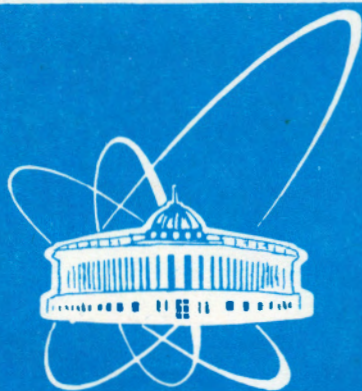


94-213



ОБЪЕДИНЕННЫЙ  
ИНСТИТУТ  
ЯДЕРНЫХ  
ИССЛЕДОВАНИЙ  
ДУБНА

P13-94-213

Ю.В.Юшкевич, К.Циммер<sup>1</sup>, Г.Байер<sup>2</sup>,  
В.А.Быстров, Х.-Ю.Клуге<sup>1</sup>, А.Ф.Новгородов,  
Е.В.Оттен<sup>1</sup>, Н.Траутманн<sup>3</sup>, К.Вендт<sup>1</sup>

**ВЫСОКОЭФФЕКТИВНЫЙ ИОННЫЙ ИСТОЧНИК  
С ПОВЕРХНОСТНОЙ ИОНИЗАЦИЕЙ  
ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ УЛЬТРАСЛЕДОВЫХ  
КОЛИЧЕСТВ РАДИОТОКСИЧНЫХ  
ИЗОТОПОВ СТРОНЦИЯ**

Направлено в журнал «Nuclear Instruments and Methods»

<sup>1</sup>Институт физики Гутенбергского университета, Майнц, Германия

<sup>2</sup>ЦЕРН, CH-1211, Женева 23

<sup>3</sup>Институт ядерной химии Гутенбергского университета, Майнц,  
Германия

## Введение

Ионные источники поверхностно-ионизационного типа нашли широкое применение в различных областях физики. Можно выделить три основных направления их использования:

- получение короткоживущих радиоизотопов редкоземельных элементов и актиноидов в "on-line" и "off-line" системах;
- получение ионов различных элементов при масс-спектрометрии;
- ядерная спектроскопия с использованием лазерной техники в сочетании с обычной масс-сепарацией.

В данной работе описан ионный источник, использованный для третьей цели.

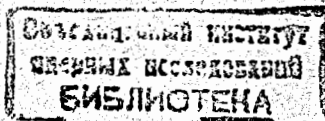
Основные требования к источнику:

- а) работа с макроколичествами (до 100 мкг) рабочего вещества;
- б) стабильная во времени эффективность ионизации;
- в) относительно короткое время ( $\approx 2$  часа) масс-сепарации.

В данной работе использовался разработанный нами ранее ионный источник с отдельной регулировкой температур ионизатора и испарителя. Конструкция источника и наличие вакуумного шлюза позволяют быстро ( $\approx 0,5$  часа) заменять образцы с высокой воспроизводимостью геометрии.

### 1. Определение ультраследовых количеств радиотоксичных изотопов Sr

В Институте физики Гутенбергского университета была разработана новая, быстрая методика следового анализа радиоактивных изотопов  $^{89}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  в образцах окружающей среды <sup>1/</sup>. Обычную масс-сепарацию объединяют с резонансно-ионизационной спектроскопией в коллинеарной геометрии, что обеспечивает высокую селективность и чувствительность. Природные образцы, используемые для этой методики - это небольшая часть воздушного фильтра (для сбора воздуха на севере Мюнхена), эксплуатировавшегося в конце апреля 1986 г., после



катастрофы реактора в Чернобыле. Для измерений была взята 1/32 часть этого фильтра. После сжигания и растворения образец был поделен на 5 частей, каждая из которых соответствовала отбору проб воздуха  $\approx 830 \text{ м}^3$ . После химического разделения каждый образец помещался в ионный источник, и ионный пучок Sr извлекался в течение 2 часов. Использовался источник с поверхностной ионизацией, нагреваемый током прямого накала. При максимальной температуре  $2200^\circ\text{C}$  эффективность ионизации Sr составляла  $\approx 5\%$ . Используя метод резонансно-ионизационной спектроскопии, было измерено содержание  $^{90}\text{Sr}$   $1,5 \text{ мБк/м}^3$ , что соответствует  $1,7 \cdot 10^9$  атомов  $^{90}\text{Sr}$  на образец. Эта величина хорошо согласуется с результатами радиохимических измерений. На рис. 1 показано распределение относительного доплеровского сдвига для  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{88}\text{Sr}$ .

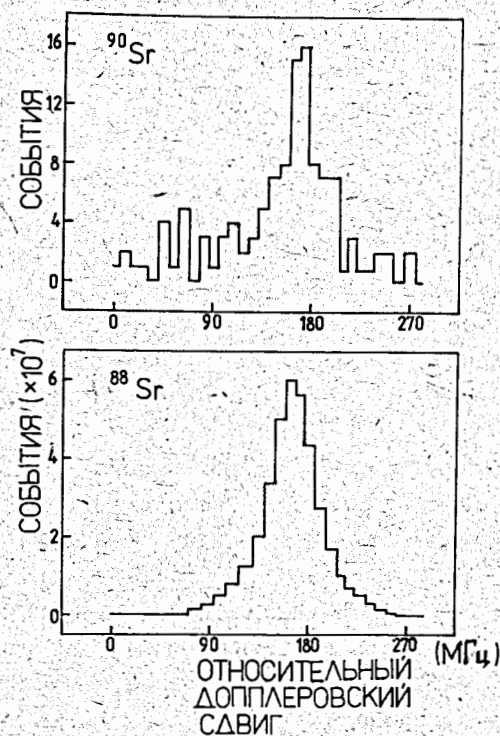


Рис. 1. Распределение относительного доплеровского сдвига для  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{88}\text{Sr}$

## 2. Конструкция и принцип действия

Основой конструкции созданного источника послужил используемый ранее в ЛЯП ОИЯИ ионный источник с поверхностной ионизацией [2]. На рис. 2 приведена схема предложенного нами ионного источника.

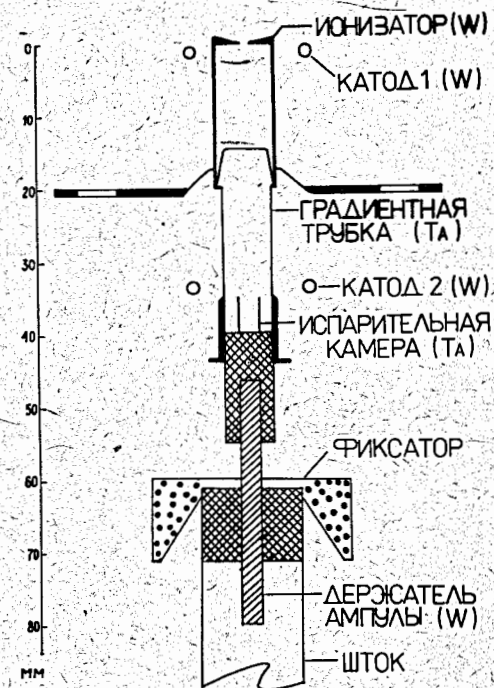


Рис. 2. Схема ионного источника

Непосредственно источник (разборная ампула) крепится на штоке, что позволяет быстро вводить и выводить его через вакуумный шлюз в объем масс-сепаратора. Исследуемый образец помещается в испарительную камеру, выполненную из тантала, обогрев которой осуществляется лучистой энергией катода 2. Атомы испаряются и попадают в вольфрамовый ионизатор, представляющий собой полу ампулу (наружный диаметр 5 мм, стенки толщиной  $\approx 1$  мм, масса  $\approx 5$  г), где ионизируются и через отверстие ( $\varnothing 0,1 \pm 0,4$  мм) вытягиваются электрическим полем.

Нагрев ионизатора происходит в результате электронной бомбардировки его поверхности. Благодаря малым размерам ампулы, температура ее может достигать более  $3000^{\circ}\text{C}$ . В тонкостенной танталовой трубке создается нужный для стронция большой перепад температуры от  $2700^{\circ}\text{C}$  на ионизаторе до  $1900^{\circ}\text{C}$  на испарителе. Нагрев катодов осуществляется двумя регулируемым источниками постоянного тока (65 А, 10 В). Для электронной бомбардировки используется источник постоянного напряжения (1000 В, 1 А), также регулируемый.

Эффективность ионизации источника такого типа исследовалась в работе <sup>13/</sup>, где было показано, что при выполнении определенных условий по температуре источника и плотности извлекаемого ионного тока, коэффициент ионизации  $\beta^*$  в источнике может быть существенно выше вычисленного по уравнению Саха-Лэнгмюра. При этом величина  $\beta^*$  определялась из следующих соотношений:

$$\beta^* = \frac{a^*}{1 + a^*}$$

$$a^* = a_{s-L} \cdot \exp\left(\frac{e\Delta U}{kT}\right) = a_{s-L} \cdot N$$

$$\Delta U = \left(\frac{kT}{2e}\right) \ln\left[\left(\frac{A_0 T^2}{e\nu_0 \beta_{s-L}}\right) \left(\frac{M}{m}\right)^{1/2}\right] - \frac{\phi}{2},$$

где  $\alpha^*$  и  $\alpha_{s-L}$  - степень ионизации в источнике и рассчитанная по формуле Саха-Лэнгмюра соответственно;  $T$  - температура источника, К;  $\phi$  - работа выхода, эВ;  $k$  - постоянная Больцмана;  $A_0 = 120 \text{ а.см}^{-2}$  - постоянная Ричардсона-Дэшмана;  $\nu_0 = \nu_a + \nu_i$  - удельный поток частиц с внутренней поверхности в объем источника;  $e, m$  - заряд и масса электрона;  $M$  - масса иона.

На рис. 3 приводятся вычисленные значения  $N$  в зависимости от температуры вольфрамового ионного источника и величины извлекаемой плотности ионного тока  $j^+$ ; ( $e\nu_0 \beta_{s-L} = e\nu_i = j^+ / 1,47$ ) <sup>14/</sup>.

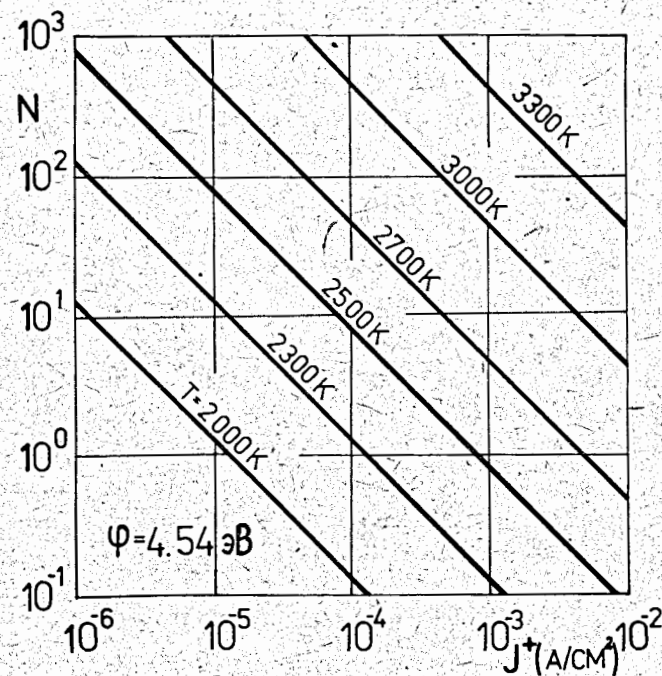


Рис. 3. Вычисленные значения  $N$  в зависимости от температуры вольфрамового ионного источника и величины извлекаемой плотности тока

Расчетные зависимости, полученные в приближении термодинамически равновесной плазмы, оказались в хорошем согласии с экспериментом. Как известно, условие термодинамически равновесной плазмы отвечает максвелловское распределение ионов и электронов и равенство их температур. В рассматриваемом ионном источнике при наличии пристеночного скачка потенциала  $\Delta U$ , являющегося потенциальным барьером для электронов, последние имеют бoльцмановское распределение и находятся в состоянии термодинамического равновесия вблизи

любой эквипотенциальной поверхности (трубки) в полости источника. Равновесию электронов способствует также внешнее магнитное поле спирали нити накала.

### 3. Эксперименты и результаты

Первые эксперименты с ионным источником проводились на масс-сепараторе комплекса ЯСНАПП-2 ОИЯИ [5]. Радиоизотопы стронция радиохимически выделялись из облученных на пучке протонов 600 МэВ фазотрона ЛЯП фольг Nb и Mo. Фракция изотопов стронция масс-сепарировалась для получения чистого изотопа  $^{82}\text{Sr}$ , который затем использовался как метка. Для изучения зависимости эффективности ионизации Sr от его количества использовались азотнокислые растворы  $^{82}\text{Sr}$  без носителя и суммы естественных изотопов Sr, из которых приготавливались образцы объемом 20-100 мкл, содержащие 10-50 кБк  $^{82}\text{Sr}$  и 3-20 мкг естественной смеси стабильных изотопов Sr. Смеси упаривались на Ta-фольгах 10x10 мм толщиной 15 мкм. После упаривания фольги сворачивались, измерялись на  $\gamma$ -спектрометре для точного определения количества  $^{82}\text{Sr}$  и помещались в ионный источник масс-сепаратора. После окончания сепарации измерялась активность коллектора масс-сепаратора и определялась эффективность ионизации.

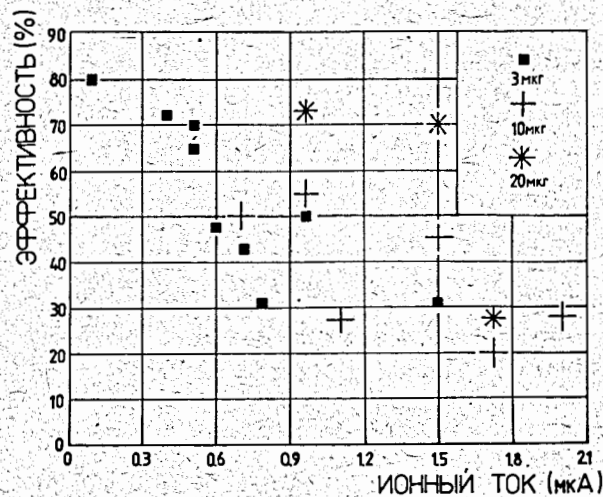


Рис. 4. Зависимость эффективности  $^{82}\text{Sr}$  от ионного тока

На рис. 4 показана зависимость эффективности ионизации  $^{82}\text{Sr}$  при наличии разных весовых количеств Sr. Показано, что при ионных токах от 1 до 1,5 мкА эффективность ионизации достигает 50% и выше. Затем исследования были продолжены в Институте физики Гутенбергского университета (г. Майнц, Германия), где предлагаемый ионный источник был установлен на стандартном фланце масс-сепаратора RISIKO<sup>\*1/</sup>.

На рис. 5 показана схема масс-сепаратора RISIKO, разработка и конструирование которого были выполнены с учетом опыта работы on-line сепаратора ISOLDE-2 в ЦЕРН. Ионы, образовавшиеся в источнике, извлекаются вытягивающим электродом и ускоряются. Потенциал ускорения может меняться от 20 до 50 кВ. Две линзы, одна одиночная электростатическая, другая - электрический квадрупольный триплет, формируют размер ионного пучка перед входом в магнит масс-сепаратора. Магнит имеет двойную фокусировку (радиус 750 мм; угол отклонения  $60^\circ$ ; напряженность поля 0,62 Тл). Система щелей в фокальной плоскости выбирает ионы требуемой массы. Форма и размер ионного пучка контролируются рядом сканеров пучка по X и Y на всем его пути, т.е. около 12 м.

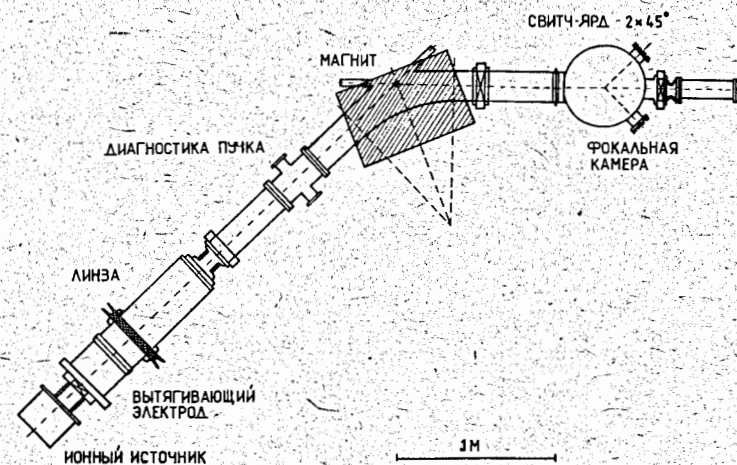


Рис. 5. Схема электромагнитного масс-сепаратора RISIKO

\* RISIKO - Resonance Ionization Spectroscopy in Colliner Geometry.

Ряд цилиндров Фарадея позволяет измерять абсолютный ток пучка и трансмиссию по всей длине масс-сепаратора. В обычном режиме квадрупольно-триплетная линза не используется, одиночная электростатическая линза формирует ионный пучок диаметром около 10 мм, который входит в магнит. Разрешение масс в этом случае составляет  $m/\Delta m = 700$  в фокальной плоскости. В режиме высокого разрешения промежуточный фокус между электростатической и квадрупольной линзами увеличивает диаметр ионного пучка до 30 мм. В этом режиме достигается лучшее разрешение масс  $m/\Delta m > 1200$ . Суммарная трансмиссия не зависит от режимов работы линз и составляет  $> 90\%$ .

В исследованиях использовались образцы стабильного стронция в количестве  $10^{17}$  и  $10^{18}$  атомов. Трансмиссия и эффективность определялись по измерению ионных токов изотопов стронция. Каждый образец стронция, завернутый в тонкую танталовую фольгу помещался в испарительную камеру ионного источника и затем проводилась масс-сепарация. Во время разделения температура ионизатора была постоянной ( $\approx 2700^\circ\text{C}$ ), а температура испарителя регулировалась так, чтобы величина ионного тока была фиксированной.

На рис. 6 показана типичная зависимость стабилизированного ионного тока стронция от времени масс-сепарации.

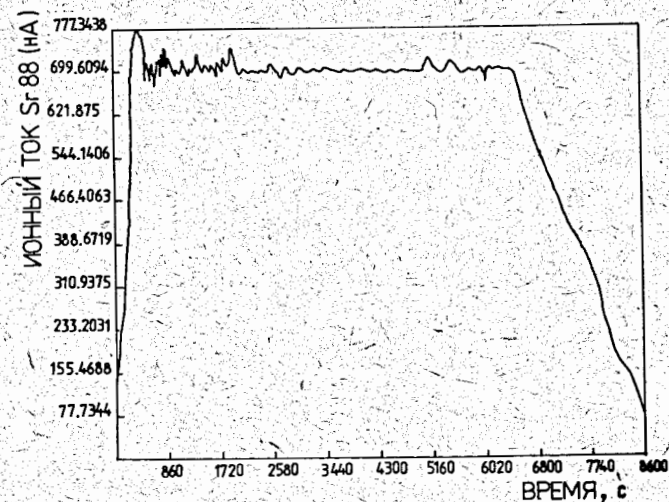


Рис. 6. Зависимость ионного тока  $^{88}\text{Sr}$  от времени разделения

В таблице 1 приведены данные по разрешению и трансмиссии установки RISIKO для двух значений диаметров выходного отверстия ампулы при разных ионных токах.

Таблица 1

	Диаметр выходного отверстия						Массовое разрешение
	ø 0,4 мм			ø 0,1 мм			
Ионный ток	$^{88}\text{Sr}$	$^{86}\text{Sr}$	$^{84}\text{Sr}$	$^{88}\text{Sr}$	$^{86}\text{Sr}$	$^{84}\text{Sr}$	Трансмиссия
100 нА	74%	75%	76%	87%	-	-	
300 нА	62%	75%	72%	69%	-	86%	1420
600 нА	29%	54%	60%	33%	56%	86%	1030
1 мкА	13%	36%	50%	18%	35%	69%	560
2 мкА	11%	13%	17%	14%	-	66%	880

В табл. 2 приведена эффективность ионизации  $^{88}\text{Sr}$  при разных температурах и ионных токах. Показано, что высокая эффективность может быть достигнута за достаточно разумное время сепарации (1,5-3 часа). Температура испарителя и ионизатора измерялась микропирометром сравнения через кварцевое окно в стенке кожуха ионного источника.

Таблица 2

Количество атомов в образце, шт.	Ионный ток, нА	Температура ионизатора, $^\circ\text{C}$	Время разделения, мин	Эффективность ионизации, %
$10^{17}$	700	2600	300	79
$10^{17}$	1050	2670	90	60
$10^{17}$	800	2800	280	86
$10^{18}$	4000	2600	200	30

Во время проведения исследований были отмечены два негативных фактора: наличие в образцах естественного Са, что приводит к снижению эффективности ионизации, а также присутствие ионного тока изотопов вольфрама из материала катода 1, который создает дополнительный фон при измерениях. Для устранения первого фактора необходима более тщательная химическая обработка образца, а для второго - очень точная юстировка ампулы ионного источника.

## 5. Выводы

Созданный ионный источник поверхностно-ионизационного типа с электронной бомбардировкой позволяет получать высокую температуру ( $\approx 3000^\circ\text{C}$ ) на ионизаторе и относительно низкую температуру испарителя. Эффективность ионизации Sr составляет  $>60\%$  при загрузке исследуемого образца до  $10^{17}$  атомов ( $\approx 10\text{мкг}$ ). Конструкция источника позволяет проводить быструю замену образца с хорошей воспроизводимостью геометрии. При использовании этого ионного источника на установке RISIKO снижен предел обнаружения  $^{90}\text{Sr}$  (с  $10^8$  до  $10^7$ ) атомов в образце (7,6МБк).

## Литература

1. L.Monz et al.-Spectrochimicf Acta, v.48B, p. 1655, 1993.
2. G.Beyer et al.-Nucl.Instr. and Meth., 148, p. 543, 1978.
3. G.Beyer et al.-Nucl.Instr. and Meth., 96, p. 437, 1971.
4. V.P.Afanasjev et al.-Nucl.Instr. and Meth., 145, p.533, 1977.
5. V.G.Kalinnikov et al.-Nucl.Instr. and Meth., B70,p.62, 1992.

Рукопись поступила в издательский отдел  
3 июня 1994 года.