

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

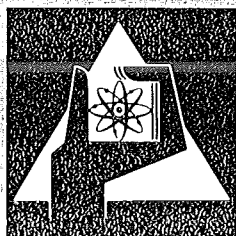
Juli 1975

KFK 2146

Institut für Angewandte Kernphysik

Schnelle elektromagnetische Massentrennung mit interner
Chlorierung zur Herstellung massenreiner Quellen von
Seltenerd isotopen mit Halbwertszeiten $T_{1/2} \geq 1$ min

B. Feurer, A. Hanser



GESELLSCHAFT
FÜR
KERNFORSCHUNG M.B.H.

KARLSRUHE

Als Manuskript vervielfältigt

Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

KFK 2146

Institut für Angewandte Kernphysik

Schnelle elektromagnetische Massentrennung mit
interner Chlorierung zur Herstellung massenreiner
Quellen von Seltenerdisotopen mit Halbwertszeiten

$$T_{1/2} \geq 1 \text{ min}$$

von

B. Feurer, A. Hanser

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Es wird die schnelle Herstellung von Quellen kurzlebiger Selten-erdnuclide, wobei eine elektromagnetische Massentrennung mit interner Chlorierung eingeschlossen ist, beschrieben. Zur Erzeugung der Radionuclide werden oxidische Pulvertargets am externen Zyklotronstrahl bei Atmosphärendruck bestrahlt. Innerhalb 30 Sekunden wird das bestrahlte Pulver zum Massenseparator transportiert, in das Chlorierungsgefäß der Ionenquelle des Massenseparators umgefüllt und mit diesem in die Ionenquelle eingeschleust. Die unmittelbar anschließende Anlaufphase der Ionenquelle dauert bis zum Erreichen von 50 % der maximalen Ionenstromstärke etwa 35 Sekunden. Diese für eine Ionenquelle mit interner Chlorierung sehr kurze Zeit wird u.a. durch Anwendung eines CCl_4 -Stosses und durch hohen Materialdurchsatz durch die Ionenquelle erreicht. Die Herstellung der massengetrennten Quellen erfordert damit nach dem Ende der Bestrahlung nur ca. 65 Sekunden plus 1,5 Halbwertszeiten des interessierenden Nuklids (optimale Auffangzeit). Das Verfahren wird demonstriert im Zusammenhang mit Messungen am Zerfall des ^{143}Gd (1,8 min).

Abstract

Rapid Electromagnetic Mass Separations with Internal Chlorination for Preparing Sources of Rare Earth Isotopes with Half-Lives $T_{1/2} \geq 1$ min

The rapid preparation of sources of short-lived rare earth nuclides including electromagnetic mass separation with internal chlorination is described. To produce the radioactive nuclides, oxide powder targets are irradiated with the external cyclotron beam outside of the vacuum system of the beam line. Within 30 seconds the irradiated powder is transported to the mass separator, filled into the oven of the ion source, and locked into the ion source. The starting phase of ion source operation immediately following takes about 35 seconds until the ion beam current reaches 50 % of its maximum value. This time which is very short when an ion source with internal chlorination is

used, is achieved by an initial CCl_4 -burst and a high material flux through the ion source. Thus, the preparation of the mass separated sources needs after the end of the irradiation only about 65 seconds plus 1.5 half-lives of the nuclide of interest (optimum collection time). The method is demonstrated by studies on the decay of ^{143}Gd (1.8 min).

<u>Inhaltsverzeichnis</u>	Seite
1. Einleitung	1
2. Technische Anordnung	2
2.1. Vorrichtung für Bestrahlung und Transport	2
2.2. Massenseparator-Ionenquelle	3
3. Herstellungsgang	5
3.1. Schnelles Anlaufen der Massentrennung	5
3.2. Gesamt Ablauf	6
4. Anwendungen	9
5. Schlußbemerkung	10
Literatur	12

1. Einleitung

Für kernspektroskopische Untersuchungen am radioaktiven Zerfall sind massenreine Quellen der interessierenden Nuklide oft erforderlich. Um aus Nuklidgemischen, die durch einen Beschleunigerstrahl in einer Targets substanz erzeugt werden, solche Quellen herzustellen, muß eine elektromagnetische Massentrennung durchgeführt werden. Dabei verläuft die "klassische" Herstellung nach folgendem Schema: Erzeugung der interessierenden Kerne am Beschleunigerstrahl - Transport zum Massenseparator - Einschleusen in die Ionenquelle des Separators - Durchlaufen der Anlaufphase der Massentrennung - Auffangen der Kerne bestimmter Massezahl - Ausschleusen der hergestellten Quelle. Der Untersuchung des Zerfalls kurzlebiger Nuklide nach diesem Schema sind Grenzen gesetzt. Daher wurden vielerorts kontinuierlich arbeitende On-line-Systeme aufgebaut. Diese sind in Erstellung und Betrieb aufwendiger und erfordern die Lösung spezifischer Probleme der Target-Ionenquellen-Systeme. Auch aus räumlichen Gründen sind sie nicht immer möglich. Dies alles gibt Anlaß, sich auch um die Beschleunigung des diskontinuierlichen "klassischen" Verfahrens zu bemühen. Guten Erfolg erzielte dabei z.B. eine Gruppe am Amsterdamer Massenseparator [1] bei der Abtrennung leichtflüchtiger Antimon- und Tellur-Isotope aus bestrahlten Zinnfolien. Gehört das interessierende Nuklid einem schwerflüchtigen Element an, oder ist die - unter Umständen isotopisch angereicherte - Targets substanz in Folienform nicht zu erhalten bzw. zu handhaben, so ist die Bestrahlung von Oxidpulver und die anschließende Umwandlung in leichtflüchtige Chloride durch Überleiten von CCl_4 -Dampf innerhalb der Ionenquelle des Massenseparators (interne Chlorierung) ein gebräuchliches Verfahren [2]. Obwohl die Zwischenschaltung einer chemischen Umwandlung als Zeitverlust anzusehen ist, ist auch auf diesem Wege eine verhältnismäßig schnelle Herstellung massenreiner Quellen möglich. Sie soll im folgenden am Beispiel kurzlebiger Seltenerdnuclide beschrieben werden. Die abzutrennenden radioaktiven Kerne wurden im wesentlichen über $(\alpha, xn+\gamma)$ -Reaktionen erzeugt. Mit Einschränkung kann dabei angenommen werden, daß die Targets substanz und die erzeugten Radio-

nuklide sich als benachbarte Seltenerden in der Ionenquelle des Separators ähnlich verhalten.

2. Technische Anordnung

2.1. Vorrichtung für Bestrahlung und Transport

Die Nuklide, deren Zerfall untersucht werden soll, wurden am externen Strahl des Karlsruher Zyklotrons (104 MeV α -Teilchen, 52 MeV Deuteronen) erzeugt. Der Strahl tritt durch eine 4 μ starke Havarfolie *) aus dem Vakuum aus und durchläuft das in einer Tasche aus 20 μ starker Cu-Folie befindliche Targetpulver (ca. 5 mg) bei Atmosphärendruck. Zur Kühlung werden Target und Strahlaustrittsfenster mit Preßluft angeblasen. Diese Kühlung ist ausreichend für einen α -Teilchenstrahl von 6 μ A, der am Ort der Bestrahlung einen Querschnitt von knapp $2 \times 3 \text{ mm}^2$ hat. Abb. 1 zeigt den als kleinen Rohrpostläufer ausgebildeten Halter

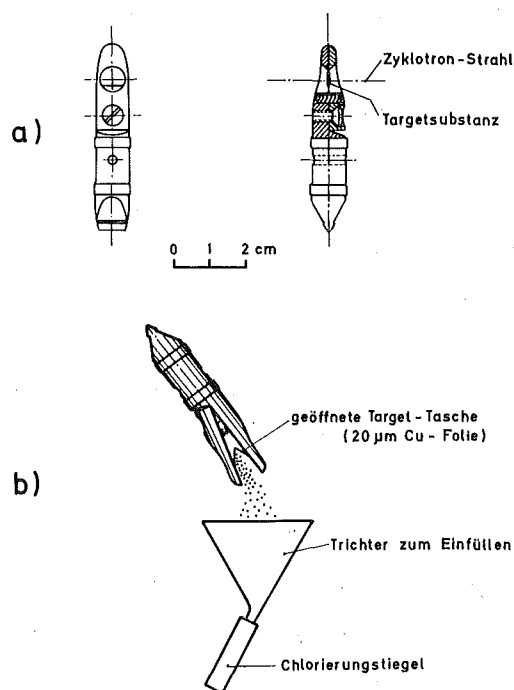


Abb. 1: Rohrpostläufer mit Targetpulvertasche in Bestrahlungsposition (a) und beim Entleeren (b).

*) Co-Cr-Ni-Mo-Legierung; Hamilton Precision Metals, Reading, Pens., USA

der Targetpulvertasche. Eine wassergekühlte Blende unmittelbar vor dem Target stellt sicher, daß nur die Targetpulvertasche vom Strahl getroffen wird. Zur Reduktion der Teilchenenergie können 12 mm vor dem Target wassergekühlte Beryllium-Absorber in den Zyklotronstrahl gebracht werden. Der Halter der Targetpulvertasche wird mit Preßluft durch einen 50 m langen, dickwandigen PVC-Schlauch zum Massenseparator-Raum geblasen. Die pneumatische Transportstrecke endet in einer Glovebox. Dort wird das Targetpulver von Hand in den Chlorierungstiegel der Massenseparator-Ionenquelle umgefüllt (Abb. 1b). Dabei öffnet sich nach Lösen einer Schraube die Targetpulvertasche durch Federkraft.

2.2. Massenseparator-Ionenquelle

Der benutzte Massenseparator ist in seinen Grundzügen in Ref. [3] beschrieben. Für die schnellen Massentrennungen mit interner Chlorierung wurde eine Nielsen-Ionenquelle [4] mit einer im Vergleich zum Original etwas verkleinerten Entladungskammer verwandt (s. Abb. 2). Die inneren Teile bestehen aus Graphit, ausgenommen die Wolfram-Kathode (k), zwei nur wenig in die Entladungskammer hineinragende Kathodenhalterungen (i) aus Molybdän und zwei Al_2O_3 -Isolatorringe (l). Der schleubare Chlorierungstiegel (f) wird (nach dem Füllen) auf das CCl_4 -Zuführungsrohr (e), das gleichzeitig beim Einschleusen als Führungsstange dient, aufgeschraubt. Zum Einschleusen des Tiegels kann die sehr klein gehaltene Schleusen-kammer stoßartig in ein leeres Puffervolumen vorevakuiert werden. Nach dem Einschleusen läßt sich der Chlorierungstiegel durch eine Heizspirale mit 400 W Leistung schnell aufheizen. Die Chlorierungskammer (g) ist zur Ionenquellen-Entladungskammer hin mit einer Öffnung von 1 mm Durchmesser versehen. Vor dieser Öffnung befindet sich in der Chlorierungskammer etwas Quarzwolle. In der Entladungskammer sind außer der axialen Ionenextraktionsöffnung (n) radial acht zusätzliche Bohrungen (o) mit 1 mm Durchmesser angebracht.

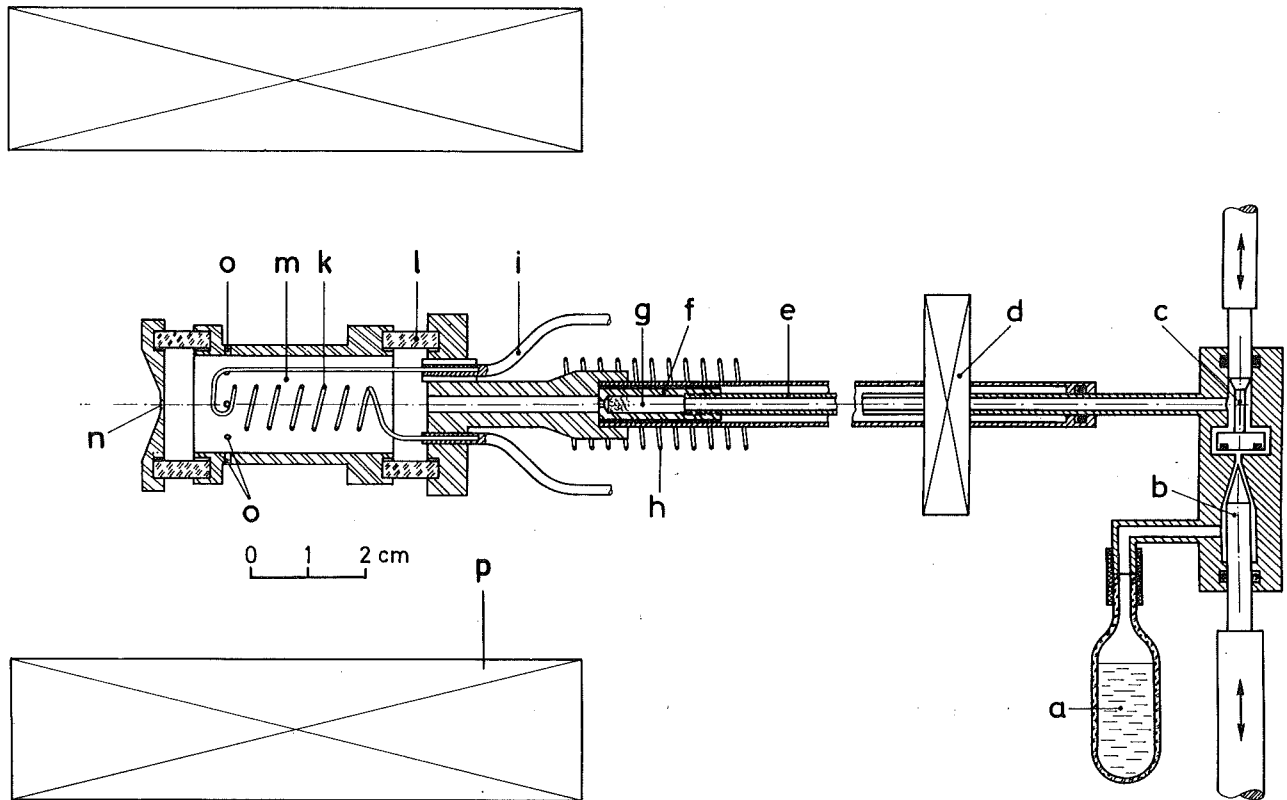


Abb. 2: Ionenquelle des Massenseparators.

a: CCl_4 -Vorrat, b: CCl_4 -Dosierventil, c: CCl_4 -Ab-
sperrventil, d: Schleusenventil, e: CCl_4 -Zuführungs-
rohr, f: Chlorierungstiegel, g: Chlorierungskammer,
h: Heizwicklung, i: Kathodenhalterung, k: Kathode,
l: Isolierring, m: Entladungskammer, n: Ionenextrak-
tionsöffnung, o: zusätzliche Öffnungen, die den
Materialdurchsatz erhöhen, p: Magnetspule.

3. Herstellungsgang

3.1. Schnelles Anlaufen der Massentrennung

Für die Massentrennung kurzlebiger Nuklide ist ein schnelles Anlaufen der Chlorierung und Ionisierung des in die Ionenquelle eingebrachten Materials wesentlich. Dies läßt sich erreichen, wenn folgendes beachtet wird:

1. Die Ionenquelle und der CCl_4 -Vorrat dürfen nicht durch Substanzen verunreinigt werden, die die Ausbildung des gewünschten Ionenstrahls hemmen. Eine neu montierte Ionenquelle muß daher zunächst zur Reinigung einige Stunden mit CCl_4 betrieben werden.
2. Das Oxidpulver soll im Chlorierungstiegel gut verteilt sein. Dies wird erreicht, indem das Oxidpulver auf die Quarzwolle im Tiegel geschüttet und der Tiegel beim Aufschrauben auf das CCl_4 -Zuführungsrohr um eine waagrechte Achse gedreht wird.
3. Es muß für hinreichend hohen CCl_4 -Druck in der Chlorierungskammer und für raschen vollständigen Transport des gebildeten Chlorids in die Entladungskammer gesorgt sein. Zu diesem Zweck wurden die erwähnten zusätzlichen radialen Öffnungen in der Entladungskammer angebracht. Durch sie erhöht sich der Materialdurchsatz und über den Druckabfall an der kleinen Öffnung zwischen Chlorierungs- und Entladungskammer der Druck in der Chlorierungskammer. Natürlich ist unter diesen Umständen die Ausbeute der Massentrennung gering. Bei nur kurz dauernden Trennungen, für die genug bestrahltes Material zur Verfügung steht, ist dies unerheblich.
4. Eine schnelle Massentrennung mit interner Chlorierung muß durch einen geeignet dosierten CCl_4 -Stoß eingeleitet werden. Die optimale Stärke dieses Stoßes hängt vom verwendeten Oxidpulver ab und muß empirisch ermittelt werden. Bei unseren Massentrennungen lag die Größenordnung des Anfangsstoßes bei 0,3 Torr-liter und die des anschließenden kontinuierlichen CCl_4 -Stromes bei 0,001 Torr-liter/Sekunde.

Mit bestrahltem Samarium als zu trennendem Material verläuft die Anlaufphase im einzelnen wie folgt: Kathoden- und Ionenquellenmagnetstrom haben Normalwert, die Heizspirale für den Chlorierungstiegel ist voll aufgeheizt. Der Chlorierungstiegel wird eingeschleust, das CCl_4 -Absperrventil hinter dem Dosierventil wird geöffnet, die Bogenspannung wird eingeschaltet. 8 Sekunden nach dem Einschleusen erfolgt der 4 Sekunden dauernde CCl_4 -Stoß. Danach wird die Beschleunigungsspannung eingeschaltet. Meist 30-35 Sekunden nach Ende des Schleusvorgangs bzw. 60-70 Sekunden nach Ende der Zyklotron-Bestrahlung ist der Samariumionenstrom am Auffänger des Separators auf etwa 50 % des ca. 70 μA betragenden Maximalstromes angestiegen; anfängliche Instabilitäten und Verbreiterungen der Massenlinien sind abgeklungen. Die Leistung der Heizspirale für den Chlorierungstiegel wird jetzt reduziert, um zu vermeiden, daß die für die Chlorierung günstige Temperatur (ca. 900°) überschritten wird.

3.2. Gesamtablauf

In Abb. 3 ist der gesamte Herstellungsgang am Beispiel eines Nuklides mit 1,8 Minuten Halbwertszeit zeitproportional dargestellt. Zunächst wird das Nuklid in einer im allgemeinen zwei Halbwertszeiten dauernden Zyklotronbestrahlung erzeugt. Danach wird das bestrahlte Targetpulver in den Massenseparatorraum transportiert (Dauer: 5 Sekunden) und in den Chlorierungstiegel umgefüllt (5-8 Sekunden). Weitere 17 Sekunden erfordert es, den gefüllten Chlorierungstiegel von der Glovebox zur Ionenquelle des Separators zu bringen, ihn auf das CCl_4 -Zuführungsrohr aufzuschrauben und einzuschleusen. Die zuvor geschilderte Anlaufphase der Ionenquelle schließt sich an. 60 bis 70 Sekunden nach Ende der Bestrahlung wird durch Öffnen einer Abdeckklappe im Auffänger des Massenseparators mit dem Auffangen der abzutrennenden Kerne begonnen. Bei normalem, durchschnittlichem zeitlichen Verlauf des vom Targetmaterial herrührenden Ionenstromes - die Ionenstromkurve einer typisch verlaufenen Trennung ist in Abb. 3 wiedergegeben - beträgt die optimale Auffangzeit 1,5 Halbwertszeiten des interessierenden Nuklids. Selbst für ein Nuklid mit nur einer Minute Halbwertszeit ergibt sich damit eine noch in Kauf zu nehmende Umarbeitungszeit (Phasen a bis c

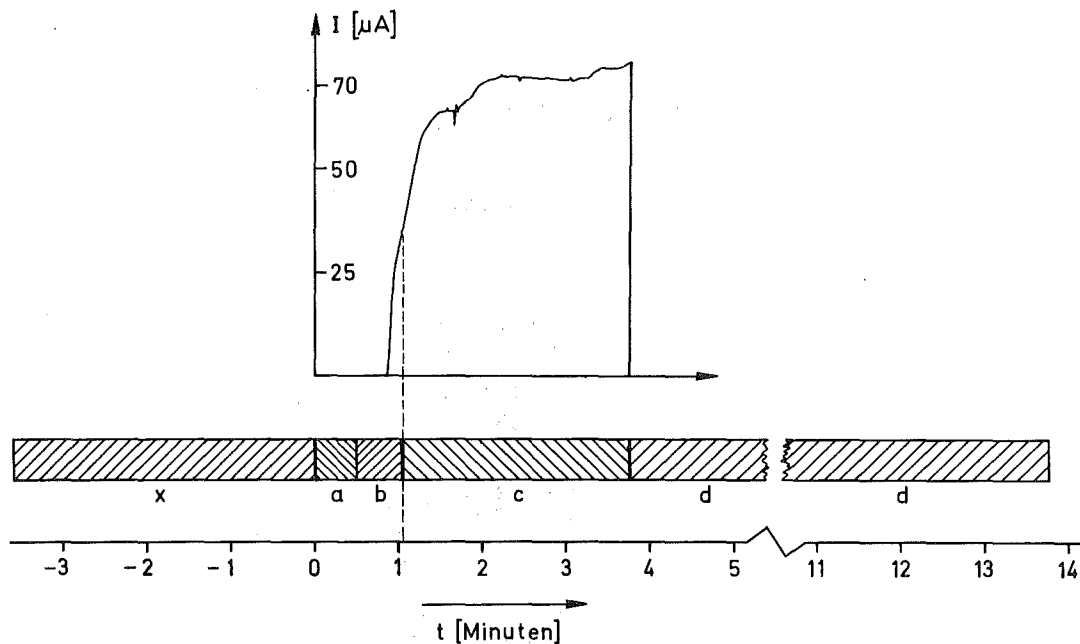


Abb. 3: Zeitablauf der Quellenherstellung für ein Nuklid mit 1,8 Minuten Halbwertszeit.
x: Bestrahlung, a: Transport, Umfüllen und Einschleusen, b: Anlaufphase der Massentrennung, c: Auffangen der interessierenden Kerne, d: Leerbrennen der Ionenquelle. Als Kurve ist der vom Targetmaterial herrührende Ionenstrom I einer typisch verlaufenen Massentrennung wiedergegeben.

aus Abb. 3) von insgesamt 2,6 Minuten. Die hergestellten Quellen können innerhalb 3 Sekunden vor einen Si(Li)-Detektor mit Magnetfilter [5], der an das Vakuumsystem des Massenseparators angeschlossen ist, und innerhalb 8 Sekunden vor Ge(Li)-Detektoren in Meßposition gebracht werden. In letzterem Falle werden sie aus dem Vakuum ausgeschleust.

Bei der Untersuchung kurzlebiger Nuklide müssen viele Quellen hergestellt werden, um eine ausreichende Meßzeit zu ermöglichen. Sofort nach dem Ende einer Quellenherstellung wird daher, um die Umwandlung von Oxid in Chlorid zu beenden, der Chlorierungstiegel aus der heißen Zone herausgezogen, und die Ionenquelle

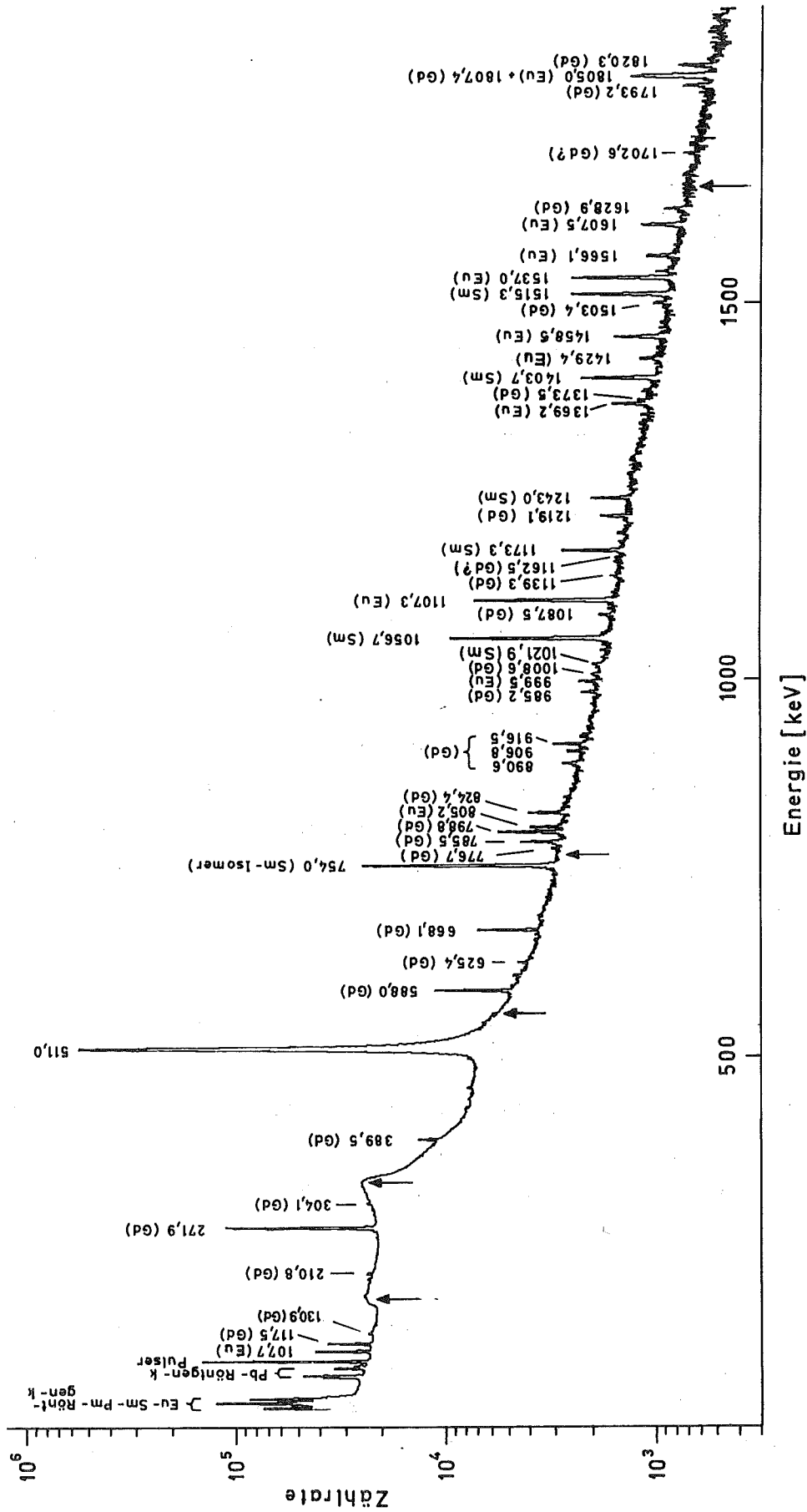


Abb. 4: Gammapektrum von ^{143}Gd und miterzeugten Isobaren. An den durch Pfeile markierten Stellen wären die stärksten γ -Linien zu erwarten, die von Nukliden mit benachbarter Massezahl herrühren.

wird während 10 Minuten von angesammeltem Seltenerdchlorid leergebrannt. Die folgende Massentrennung verläuft dann wieder nur mit frischbestrahlter Substanz.

4. Anwendungen

Das Verfahren wurde angewandt zur Herstellung massenreiner Quellen für Untersuchungen der radioaktiven Zerfälle von ^{138}Pm (3,5 min), ^{137}Pm (2,4 min) [6], ^{143}Gd (1,8 min) [7] und ^{142}Gd (1,5 min) [7]. Die Quellen enthielten neben den interessierenden Kernen auch isobare Nuklide mit um 1-2 verminderter Ordnungszahl. Abb. 4 zeigt als Beispiel das Gammaspektrum von ^{143}Gd und miterzeugten Isobaren, wobei die an 18 Quellen gewonnenen Meßergebnisse aufsummiert wurden. Das Nuklid ^{143}Gd wurde aus zu 95 % angereichertem ^{144}Sm über die $^{144}\text{Sm}(\alpha, 5n)^{143}\text{Gd}$ -Reaktion erzeugt. Da gleichzeitig auch ^{142}Gd produziert werden sollte, wurden die Bestrahlungen bei einer α -Energie von 90 MeV ausgeführt. Bei dieser Energie liegt das im Vergleich zur Bildung von ^{143}Gd wesentlich schwächere Maximum des Bildungsquerschnittes von ^{142}Gd [8]. Die ^{143}Gd -Quellen fielen durch die Wahl dieser Energie gut um den Faktor zwei schwächer aus als optimal möglich. Sie enthielten im Mittel bei Meßbeginn $0,2 \mu\text{Ci } ^{143}\text{Gd}$ *). Es ließen sich mit diesen Quellen aussagekräftige γ - γ -Koinzidenzmessungen mit zwei Ge(Li)-Detektoren ausführen. Aus den genannten Messungen konnte das in Abb. 5 gezeigte Niveauschema des ^{143}Eu erstellt werden [7], das gegenüber dem Ergebnis einer Untersuchung mit nichtmassengetrennten Quellen [9] einen erheblichen Fortschritt darstellt.

Die starke 754 keV- γ -Linie des in Abb. 4 gezeigten Spektrums ist dem Zerfall von $^{143\text{m}}\text{Sm}$ zuzuordnen. Dieses Nuklid hat eine Halbwertszeit von nur 65 Sekunden. Die Beobachtung des zeitlichen Intensitätsabfalls der genannten Linie zeigt, daß mindestens 90 % dieser Linie ihre Ursache wirklich in einem zerfallenden Vorrat

*) Dabei ist angenommen, daß die stärkste γ -Linie des ^{143}Gd -Zerfalls fast zu 100 % emittiert wird.

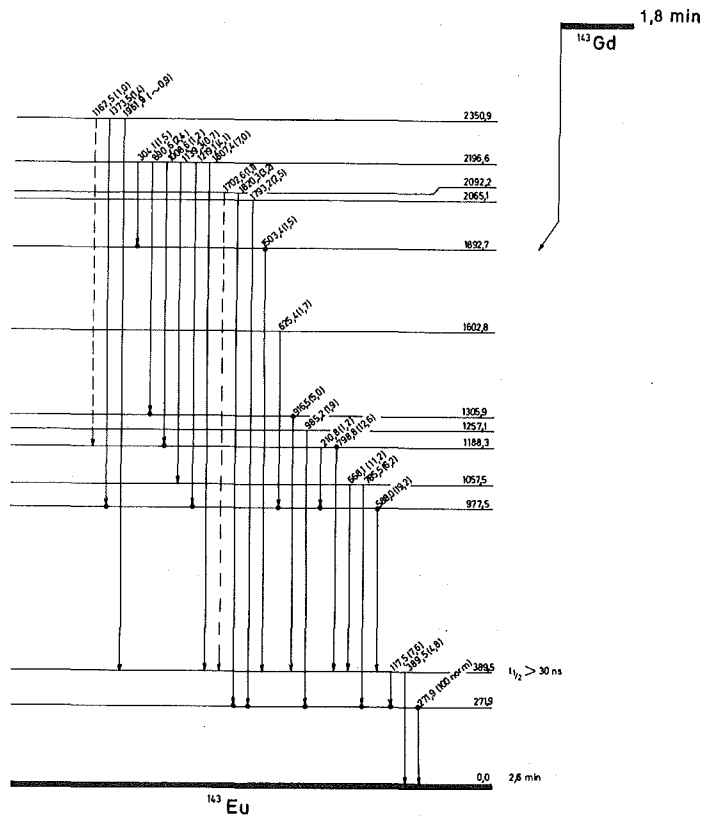


Abb. 5: Niveauschema des ^{143}Eu .

Die Zahlen in Klammern sind relative γ -Intensitäten, gültig für den Zerfall des ^{143}Gd . Nachgewiesene Koinzidenzen sind durch Punkte markiert.

an $^{143\text{m}}\text{Sm}$ haben und nicht in ständiger Neubildung von $^{143\text{m}}\text{Sm}$ durch zerfallendes ^{143}Eu . Dies demonstriert weiter die Möglichkeiten des Verfahrens, über das berichtet wurde.

5. Schlußbemerkung

Der beschriebene Ablauf der Herstellung massenreiner Quellen ist für Nuklide mit Halbwertszeiten bis herab zu einer Minute, in Einzelfällen auch bei noch kürzeren Halbwertszeiten anwendbar. Da unsere Anordnung auf Vorhandenem aufbaut, ist mit ihr sicher nicht das Optimum erreicht. Es ist anzunehmen, daß durch Verkleinern der Ionenquelle, Ändern der Vakuumanordnung und durch Detail-Verbesserungen beim Transport, Umfüllen und Einschleusen des bestrahlten Materials die Zeit zwischen Bestrahlungsende und Beginn des Auffangens der getrennten Kerne noch deutlich

verkürzt werden könnte. Andererseits würde der Übergang zu stromstärkeren Ionenquellen mit Absaug Schlitz die Stärke der hergestellten Quellen noch wesentlich erhöhen.

Literatur

- |1| M.E.J. Wigmans, B.O. ten Brink, R.J. Heynis,
P.M.A. van der Kam, L.A. Paanakker, H. Verheul
Proc. 8th Intern. EMIS-Conf., Skövde, 1973, p. 451
- |2| G. Sidenius, O. Skilbreid
Electromagnetic separation of radioactive isotopes
(ed. M.J. Higatsberger and F.P. Viehbock)
Springer, Wien, 1961, S. 243
- |3| H. Fabricius, K. Freitag, S. Göring, A. Hanser,
H.L. Langmann
KFK-511 (1966)
- |4| K.O. Nielsen
Nucl. Instr. Meth. 1 (1957) 289
- |5| J. van Klinken, K. Wisshak
Nucl. Instr. Meth. 98 (1972) 1
J. van Klinken, S. Feenstra, K. Wisshak, H. Faust
eingereicht bei Nucl. Inst. Meth.
- |6| G.P. Nowicki
KFK-2017 (1974)
G.P. Nowicki, J. Buschmann, A. Hanser, H. Rebel, H. Faust,
D. Habs, H. Klewe-Nebenius, K. Wisshak
Nucl. Phys. im Druck
- |7| J. Buschmann, H. Faust, A. Hanser, H. Klewe-Nebenius,
H. Rebel, K. Wisshak
wird veröffentlicht
- |8| H. Klewe-Nebenius
Dissertation, Heidelberg (1973)
- |9| J. van Klinken, D. Habs, H. Klewe-Nebenius, K. Wisshak,
G. Nowicki, J. Buschmann, S. Göring, R. Löhken, H. Rebel,
G. Schätz; KFK-1768 (1973)