

100

# De electromagnetische scheiding van stabiele isotopen. De Amsterdamse isotopen separator

door J. Kistemaker, C. J. Zilver schoon  
en J. Schutten

## 1. Inleiding

Na de ontdekking in het begin van deze eeuw van de aanwezigheid en de eigenschappen van verschillende radio-actieve elementen, waaruit al spoedig door het werk van R u t h e r f o r d en S o d d y in 1910 de ontdekking van verschillende lood isotopen voortkwam, brak het ware inzicht in de aanwezigheid van isotope atomen van vrijwel elk element uit het periodiek systeem pas door in 1919 door het werk van A s t o n. In feite was hij de eerste bouwer van de thans zo bekende precisie massaspectrograaf. Hieruit zouden later de voor de chemie en isotopen analyse belangrijke massaspectrometer en de zeer grote isotopen separatoren voortkomen.

Na de aanvankelijk zuiver wetenschappelijke belangstelling voor de aanwezigheid en veelvuldigheid van isotopen begon men zich omstreeks 1935 te realiseren dat deze deeltjes als chemische indicatoren gebruikt konden worden, terwijl men zich ook begon te interesseren voor de opbouw van de atoomkernen dezer isotopen. De ontwikkeling van de versnellingsmachines heeft daar veel toe bijgedragen. Door deze opkomst van indicatoren chemie en kernphysica rees voor het eerst de behoefte weegbare hoeveelheden van min of meer zuivere isotopen uit het in de natuur voorkomende element af te scheiden. Zo werden in de dertiger jaren reeds  $H^1$  en  $H^2$  gescheiden t.b.v. de indicatoren chemie en o.a.  $Li^6$  en  $Li^7$  t.b.v. de kernphysica. De laatste scheiding gebeurde electromagnetisch o.a. door O l i p h a n t c.s. Het betrof nog slechts hoeveelheden van 1 milligram of minder.

De grote stoot naar industriële productie van isotopen kwam pas door de 2e Wereldoorlog. Toen ging men over tot productie van tonnen zwaar water via electrolyse en van dergelijke hoeveelheden  $U^{238}$  en  $U^{235}$  via gasdiffusie en de afscheiding met electromagnetische isotopen separatoren, de z.g. calutrons. Deze laatsten zijn eigenlijk massaspectrometers met een grote stroomsterkte, en de werking zal in de volgende paragraaf worden toegelicht. Verheugend is dat wij thans kunnen zeggen in Amsterdam zo'n calutron, of wel isotopen separator, ter beschikking te hebben. De

machine werd grotendeels onafhankelijk van de Amerikaanse en Engelse installaties ontworpen en gemaakt en is thans de enige van dit formaat op het Europese vaste land. Kleinere en nogal afwijkende typen bevinden zich in Zweden, Denemarken en Frankrijk.

## 2. De gebruikte methode

Het principe van de isotopen scheiding is aangegeven in fig. 1.

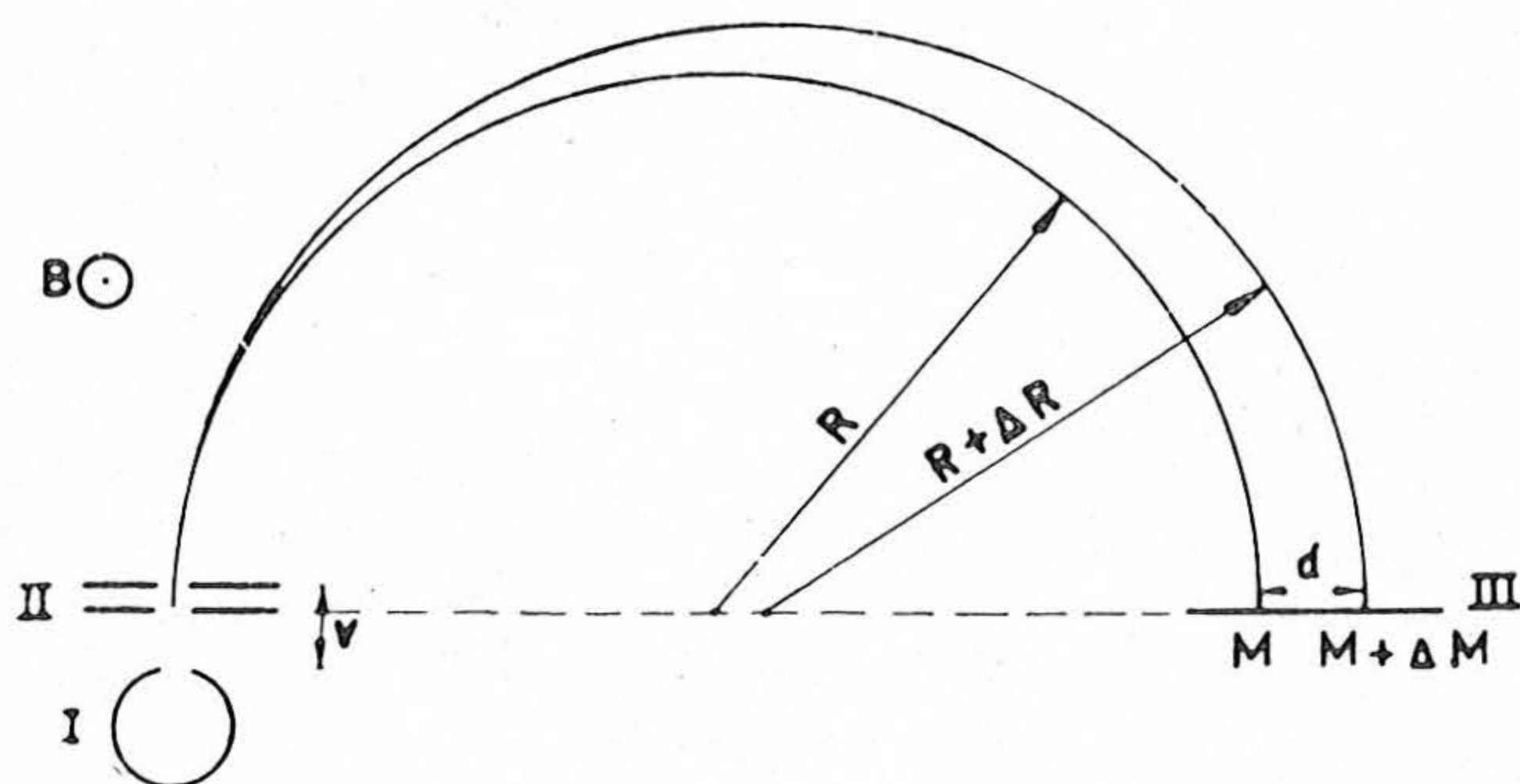


Fig. 1. Principe schema van de isotopen scheiding.

Het te separeren element wordt in een geschikte vorm in de ionenbron I gebracht. Met behulp van het versnellingsstelsel II worden de gevormde ionen uit de bron getrokken en versneld via een potentiaal verschil  $V$ . De zo gevormde ionenbundel, de z.g. „beam” doorloopt nu een magneetveld  $B$  (loodrecht op het vlak van tekening), waarin de deeltjes cirkelbanen beschrijven met kromtestraal.

$$R = (1/B) \sqrt{2MV/e}$$

$M$  is de massa van het ion, en  $e$  de lading. Komen nu in de „beam” ionen van meer dan één massa voor, dan zullen deze verschillende banen doorlopen en dus de collector III, na  $180^\circ$ , op verschillende plaatsen treffen. De afstand op de collector tussen twee isotopen met massaverschil  $\Delta M$  is dan

$$d = (\Delta M/M) R$$

Wil men nu de isotopen van alle elementen kunnen scheiden, waarbij dus in het algemeen

$$\Delta M/M > 1/235,$$

dan zal voor een minimum afstand  $d = 4$  mm de kromtestraal  $R$  ca 1000 mm moeten zijn. Deze minimale  $d$  werd aangehouden als praktische grens voor een productie apparaat waarmee zo zuiver mogelijke isotopen zouden kunnen worden geproduceerd. De af-

beeldingsbreedte van elk der isotopen mag dan niet groter dan 4 mm zijn, waardoor hoge eisen aan focussing en stabiliteit van de ionenbanen worden gesteld. Als praktische uitvoering werd gekozen:  $B$  variabel van 250 tot 3300 Gauss,  $V$  variabel van 0 tot 30 kV positief t.o.v. aarde. Beiden zijn elektronisch gestabiliseerd  $1 : 10^4$ . De magneet gebruikt max. 30 kWatt, de hoogspanningsinstallatie 3 kWatt. Het gewicht van de magneet is ca. 40 ton. Het juk werd door de N.V. Werkspoor geconstrueerd.

*a. De ionenbron.* De ionenbundel, die uit de bron getrokken wordt heeft in de praktijk een sterkte van 20 tot 60 mA. In de bron bevindt zich een druk van ca.  $10^{-3}$  mm Hg, bijv. van Zn, Mg of  $\text{UCl}_4$  damp, of  $\text{N}_2$ , A of een ander gas. De ontlading is een niet zelfstandige gasontlading in een magneetveld. De gloeidraad is van 2 mm dik wolfram. Het lichaam van de bron is geheel gemaakt uit zeer zuiver grafiet en roestvrij staal. De temperatuur van de gehele bron is zeer hoog; tot  $1000^\circ\text{C}$ . Dit is nodig om condensatie van, uit de ingebouwde oven verdampende, vaste stoffen tegen te gaan. De uittree spleet van de bron is 100 mm lang en 4 mm breed, de gaseconomie is van de orde van 10%.

*b. Het versnellingsysteem.* Dit systeem is schematisch weergegeven in fig. 2. Aan weerszijden van de uittree spleet is de ionenbron voorzien van schuinstaande wanden, die met de afzuig-electrode een speciaal soort electrostatische lens vormen. Deze z.g. Pierce lens is noodzakelijk om te voorkomen dat de ionen tijdens hun versnelling t.g.v. de onderlinge electrostatische afstoting uiteen gedreven zouden worden, waardoor een zeer sterk divergente bundel zou ontstaan. Electrode III is op aardpotentialiaal en dient voor afscherming.

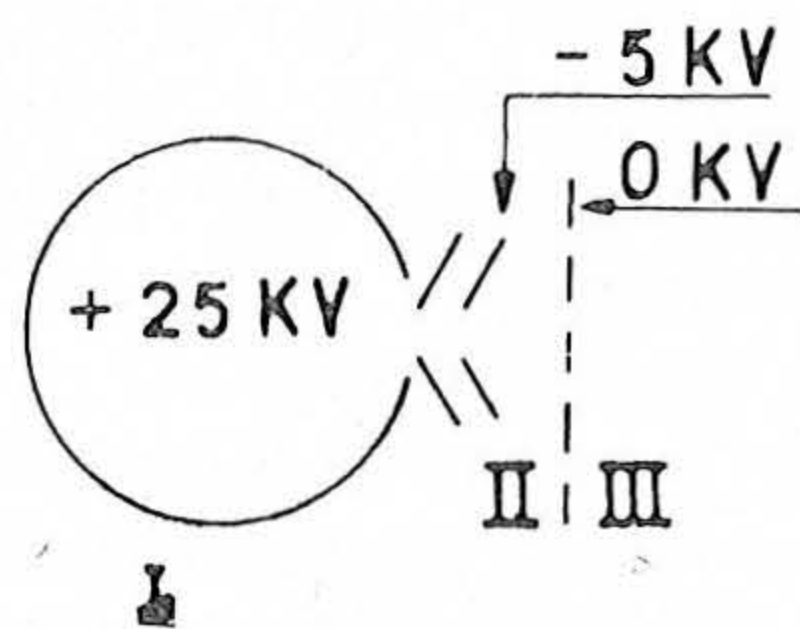


Fig. 2. Het ionen versnellingsysteem.

*c. De magneetkamer.* De breedte van de poolschoenen is 50 cm, de nuttige hoogte van deze kamer 17 cm. Het heersende vacuum is ca  $10^{-5}$  mm Hg, hetwelk bereikt wordt met een door de N.V. Philips aan ons geleverde cyclotronpomp (snelheid 5000 L/sec bij een druk van  $10^{-5}$  mm Hg). De poolschoenen van de magneet hebben een zeer speciaal radiëel profiel waardoor het veld aan de eisen van Beiduk en Konopinski voldoet, d.w.z. na  $180^\circ$  hogere orde focussing geeft. Dit maakt dat de afbeeldingsfout, die in een homogeen magneetveld 30 mm zou bedragen, hier tot 2 mm gereduceerd wordt. Het focusseringsvlak van de magnetische lens maakt een hoek van ca.  $50^\circ$  met de voerstraal (zie fig. 3).

*d. De ruimtelading.* Nadat de ionen versneld zijn, verkeren zij niet langer onder invloed van de Pierce lens en door hun onderlinge Coulomb afstoting zullen zij een zeer sterk divergerende

beam vormen. In normale massaspectrometers heeft men hiervan nog geen last, omdat de gebruikte ionenstroomsterkte daarin zeer

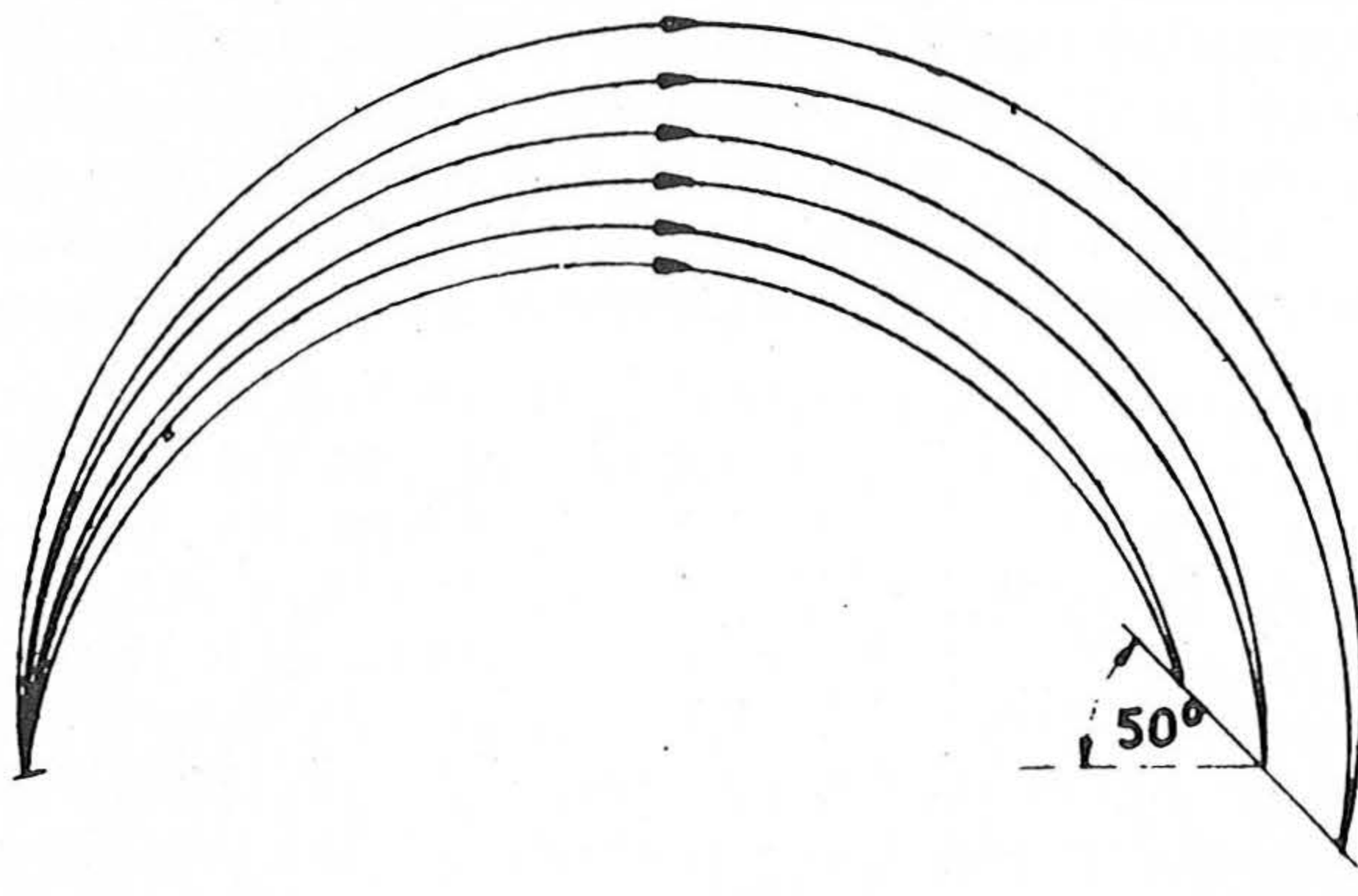


Fig. 3. Ligging van het focusseringsvlak van de magnetische lens.

klein is (b.v.  $10^{-10}$  A). Zodra de ionenstroom echter vergroot wordt tot b.v.  $10 \mu\text{A}$  beginnen de gevolgen al duidelijk merkbaar te worden in de vorm van een verbreding van de afbeelding op de collector. Deze verbreding is evenredig met de ionenstroom en verder afhankelijk van de afmetingen van het apparaat, de versnellingsspanning en de massa van de ionen. In de isotopen separator is de verbreding voor 1 mA Zn ionen b.v. al 20 cm, hetgeen heel wat meer is dan de toelaatbare 4 mm! Bovendien worden nog aanzienlijk grotere stromen gebruikt, b.v. 10 mA. De oplossing van deze moeilijkheid wordt gevonden door de positieve ruimtelading van de ionen te compenseren m.b.v. de negatieve ruimtelading van electronen. Deze electronen behoeven niet afzonderlijk geïnjecteerd te worden; zij ontstaan in de vacuumkamer ten gevolge van de bundel. De hierbij tevens ontstane langzame (z.g. thermische) positieve ionen worden ten gevolge van het potentiaalverloop uit de beam gedreven, terwijl de electronen er juist in gevangen worden. De electronen zullen zich in de ionenbundel ophopen totdat een toestand bereikt is, waarbij deze bundel practisch geneutraliseerd is en de electronen alleen t.g.v. hun thermische energie de bundel in de richting van het magneetveld kunnen verlaten. Dan stelt zich dus een evenwichtstoestand is. Het is echter noodzakelijk er zorg voor te dragen, dat de electronen niet uit de bundel weggetrokken kunnen worden (electrostatistische velden moeten worden vermeden). Integendeel: de electronen moeten zoveel mogelijk in de beam worden gehouden, hetgeen bij een  $180^\circ$  instrument verwezenlijkt wordt, doordat de beam van bron tot collector in het magneetveld loopt, waarin de electronen zich zeer moeilijk kunnen bewegen. De negatieve electrode tussen de ionenbron en de ge-

aarde electrode verhindert bovendien de electronen te ontsnappen naar de ionenbron.

Een belangrijk punt is nog, dat voor de opbouw van de geneutraliseerde beam een zekere tijd nodig is; afhankelijk van de snelheid en normale werkdruk van  $10^{-5}$  mm Hg is deze tijd van de orde van  $10^{-4}$  sec. Wanneer nu in de beam fluctuaties optreden met een tijdconstante van deze orde of kleiner, dan krijgt deze geen tijd zichzelf op te bouwen en wordt de afbeelding slecht, zelfs al is de amplitude van de fluctuaties b.v. slechts 1%. Aan de bron moet dus een extra eis gesteld worden: in de output mogen geen „ruis” of snelle oscillaties voorkomen. Dit blijkt echter bij verschillende soorten bronnen juist wel het geval te zijn. Evenzo moet de versnellingsspanning zo goed mogelijk vrij zijn van fluctuaties.

Naarmate het vacuum slechter wordt, wordt de opbouwtijd korter. Afgezien van de druklimiet bepaald door het optreden van hoopspanningsdoorslagen, worden wij evenwel ook beperkt door de grote verliezen, die de ionenbundel bij hoge druk ervaart t.g.v. strooiing en recombinitie. De verliezen kunnen gemakkelijk tot 90% van de intensiteit van de aanvankelijke ionenbundel bedragen.

*e. De collector.* De te gebruiken opvangmethode hangt af van de dampspanning van het te scheiden element. Is deze dampspanning ook bij kamertemperatuur nog minder dan  $10^{-10}$  mm Hg, dan kan men de stof doen neerslaan op een metaaloppervlak. Hierbij dient echter rekening te worden gehouden met twee effecten, n.l. 1) Vele ionen tonen een grote neiging tot reflectie en 2) Door de invallende bundel zullen de reeds neergeslagen atomen weer van de opvangplaats worden afgeschoten. De gevolgde methode is in fig. 4 te zien.

Koeling van de collector is dringend nodig. Als collector materiaal worden zeer zuiver grafiet, aluminium of koper gebruikt.

### 3. Stabilisatie en schakelapparatuur

Dit belangrijke deel van de separator kan hier niet worden beschreven. Slechts zij vermeld, dat het continu bedrijven van het apparaat zonder de „automatische piloot” die de ionenbundel precies in het midden van een collectorbakje houdt onmogelijk zou zijn. Niet minder belangrijk is een van vele andere automaten, die zorgt dat de hoogspanning tegen te sterke doorslagen beveiligd wordt. Deze installatie heeft een geheugen voor alle gebeurtenissen gedurende de laatste 5 minuten. Door de hoogspanning van 20 kV gedurende korte tijd met een 50 perioden spanning van 1 kV te moduleren kan de afbeelding op de collector via een oscillograaf zichtbaar worden gemaakt. In fig. 5 ziet men een foto van dit

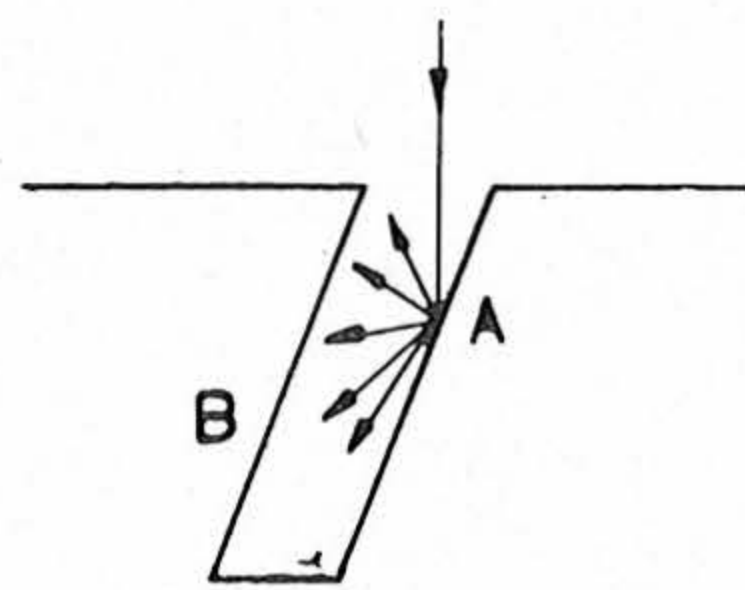


Fig. 4. Principe schets van de isotopen collector.

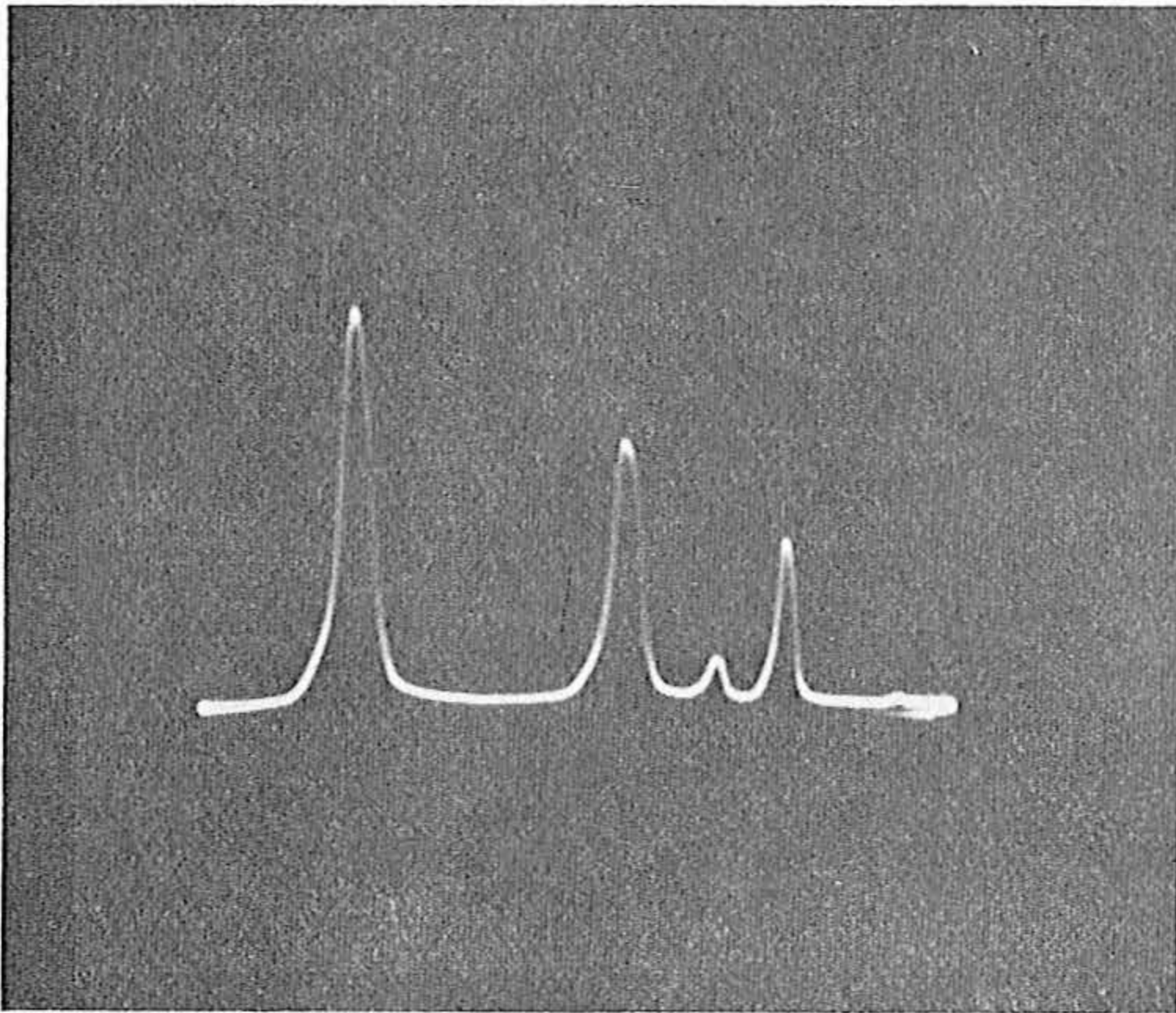


Fig. 5. Massaspectrum van de Zn isotopen, opgenomen bij een stroomsterkte op de collector van 10 mA. De sterke linkse piek correspondeert met  $Zn^{64}$  (48,9%), de overigen zijn  $Zn^{66}$  (27,8%),  $Zn^{67}$  (4,1%),  $Zn^{68}$  (18,6%) en  $Zn^{70}$  (0,6%).

separeerd zijn bijv. Zn (25 milligram), Mg (15 mgr) en U (1500 mgr). In onderstaande tabel ziet men een analyse, die met een massaspectrometer in dit Laboratorium werd uitgevoerd van het gesepareerde Zn.

TABEL

Concentraties van $Zn^{64}$ , $Zn^{66}$ , $Zn^{67}$ , $Zn^{68}$ en $Zn^{70}$ in natuurlijk zink en in afgescheiden isotopen						
Massa-eenheid	Natuurlijk zink	64-iso-toop	66-iso-toop	67-iso-toop	68-iso-toop	70-iso-toop
64	48,9	94,4	10,7	12,3	5,7	16
66	27,8	3,0	85,2	33,9	8,5	15
67	4,1	0,4	1,5	28,8	6,2	5
68	18,6	2,1	2,6	25,1	79,4	39
70	0,63	0,0	0,0	0,0	0,2	25

De zuiverheid is ongeveer gelijk aan die van Harwell, doch wij verwachten nog aanzienlijk verder te kunnen komen. De verwachting is dat in 1954 de separator het grootste deel van de tijd in productie zal zijn.

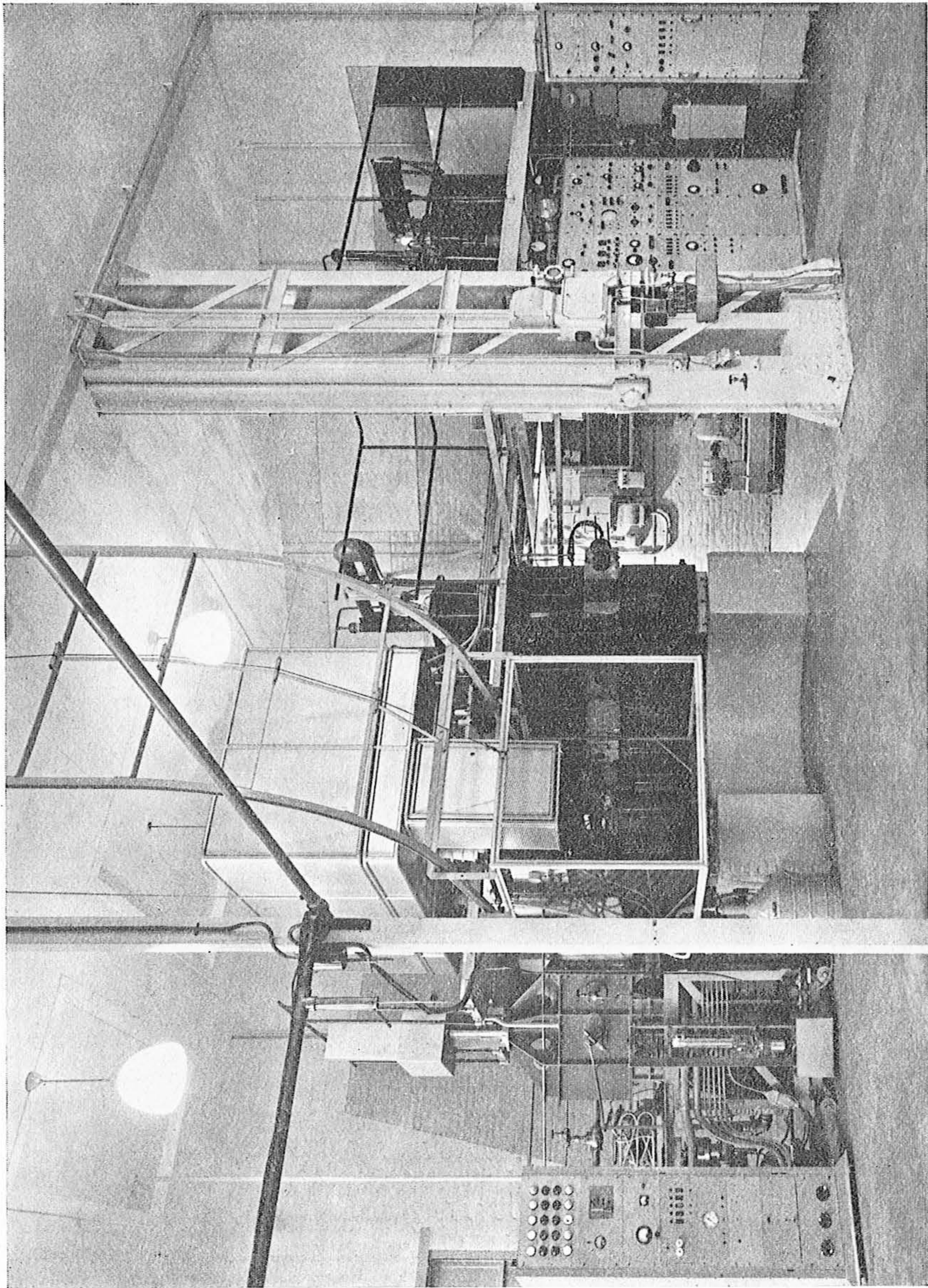
Het schenkt voldoening, dat dit nieuwe laboratorium, waar nog heel wat meer gebeurt dan hier vermeld, in 4 jaren tot resultaten en productie kon komen, dank zij de financiële steun, die de Nederlandse Organisatie Z.W.O. via de Stichting F.O.M. aan dit laboratorium deed toekomen.

Laboratorium voor Massaspectrografie,  
Hoogte Kadijk 202, Amsterdam-C.

beeld, zoals dat voor Zn werd opgenomen bij een stroomsterkte op de collector van 10 mA.

#### 4. Resultaten

De machine begint geleidelijk aan bevredigend te werken. Het proefdraaien heeft nu ca. 1,5 jaar geduurd, wat voor zo'n ingewikkeld prototype nog niet lang is te noemen. Wij hebben nu reeds vele malen 24 uur continu kunnen produceren zonder belangrijke tegenslagen. Isotopen die tot nu toe in „runs" van enige uren werden ge-



(foto Werkspoor)

Fig. 6. Overzichtsfoto van de Isotopen Separator