

ВИГОТОВЛЕННЯ ТА ДОСЛІДЖЕННЯ СКЛАДУ ІЗОТОПНИХ БЕЗПІДКЛАДКОВИХ МІШЕНЕЙ ПІДВИЩЕНОЇ ЧИСТОТИ ТА РАДІАЦІЙНОЇ СТІЙКОСТІ ДЛЯ ПРЕЦИЗІЙНИХ ЯДЕРНО-ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ

**В. Б. Бондаренко, І. П. Дряпаченко, Л. П. Кацубо, Г. М. Козеряцька,
Е. М. Можжухін, Ю. М. Павленко, І. В. Посмітюх, О. В. Хвастунов, А. Ф. Шаров**

Інститут ядерних досліджень НАН України, Київ

Описано методику виготовлення мішеней з ізотопних матеріалів з температурою плавлення до 2300 °С з використанням вакуумної напилювальної установки ВУП-5М після її відповідної модернізації. Досліджено склад мішеней з використанням ядерно-фізичних вимірювань продуктів зворотного резерфордівського розсіяння (ЗРР) прискорених іонів. Товщина мішеней визначалася як гравіметричним методом, так й за методом ЗРР.

Вступ

Сучасний стан фундаментальних досліджень з ядерної фізики, твердого тіла, нанофізики, високотехнологічного пошуку з використанням пучків іонів різноманітного елементного складу та «поштучними» інтенсивностями висуває високі вимоги до якісного та кількісного аналізу складу прискорених пучків іонів і бомбардованих ними мішеней та зразків. Окремий інтерес технологічні характеристики мають щодо перезарядних мішеней, що є необхідним елементом для тандемних електростатичних прискорювачів.

З аналізу сучасних методів виготовлення тонких плівок випливає, що можливості вакуумних технологій дають змогу отримувати мішені, які задовольняють вимогам ядерно-фізичного експерименту. З іншого боку, фізичні методи вакуумного осадження плівок забезпечені в наш час значними технічними ресурсами [1]. Однак для виготовлення плівкових мішеней з ізотопних матеріалів, температура плавлення яких (T_p) не перевищує 2500 К, недоцільно експлуатувати складне дороге обладнання. Крім того, при напилюванні плівок та фолій за використання таких високошвидкісних методів випаровування, як лазерний, іонно-плазмовий та електронно-променевиий, у плівкових конденсатах утворюються радіаційні дефекти конденсаційного походження. При цьому необхідні за технологією високі температури підкладок сприяють виникненню градієнту товщини майбутньої мішені за глибиною конденсату. Також за рахунок інтердифузії при нагріванні підкладки виникає забруднення плівки її матеріалом. Суттєвий вплив на структуру та склад плівок, що формуються, мають такі фактори, як склад та тиск залишкових газів у напилювальної камері, температура підкладки, швидкість осадження тощо. Тому актуальним виявляється дослідження впливу технологічних умов приготування на властивості тонкоплівкових ядерних мішеней для конкретної вакуумної установки.

Для аналізу складу виготовлених мішеней у даній роботі використовувався метод зворотного кулонівського розсіяння. Це дає змогу виявити домішки будь-яких елементів, у широкому діапазоні товщини, з високою чутливістю та швидкістю й без руйнації плівкових мішеней.

Експериментальна частина

Виготовлення мішеней

У даній роботі безпідкладкові ізотопні мішені виготовлялись на вакуумній напилювальній установці типу ВУП-5М. Оскільки дана установка призначена для напилювання в основному методом магнетронного розпилення, нами була проведена модернізація щодо вимірювання напруги та струму в режимі термічного випаровування матеріалу. Для контролю за швидкістю напилювання тонких шарів був застосований пристрій на основі кварцового кристалічного резонатора.

Як показано у [2, 3], структура вакуумних конденсатів завтовшки від 0,1 мкм до кількох мікронів може змінюватись від аморфної до кристалічної. Та для більшості ядерно-фізичних експериментів несуттєвими виявляються такі параметри, як полі- чи монокристалічність та розмір мікрористала, якщо тільки він не змінюється за глибиною плівки й не призводить до появи поверхневих нерівностей.

У нових технологічних умовах для приготування мішеней було використано метод імпульсного термічного осадження ізотопних матеріалів на непідігрітій підкладці. Усі мішені напилено на підшарок NaCl завтовшки 30 мкг/см². Проведені дифракційні дослідження довели, що виготовлені мішені мають аморфну структуру, яка виключає радіаційний зріст та розпухання, можливий у випадку текстурованих полікристалів. Це було нами досягнуто за рахунок напилювання матеріалів на підкладки, які не нагрівалися. На додаток слід зауважити, що осадження конденсату в перерив-

частому режимі усуває ефект скручування плівок після їх відокремлення від підкладки. Напилювання в переривчастому режимі дало змогу досягати більших швидкостей випаровування та конденсації у порівнянні зі стаціонарним режимом. Це у свою чергу зменшило забруднення плівок мішеней залишковими газами напилювальної системи. Великі швидкості потоків атомів матеріалу, що випаровується, спричиняє десорбцію з поверхні підкладки атомів залишкових газів. Мас-спектроскопічний аналіз [4] показав, що максимум у кінетичних кривих десорбції атомів, що йдуть від поверхні підкладки, збільшується з пониженням температури підкладки. Випаровувач ізотопного матеріалу працював в імпульсному режимі зі шпаруватістю, яка підбиралася експериментально для кожного ізотопу, так само як і швидкість конденсації плівок. Плівки відокремлювали від підкладки методом флоатації та закріплювали на оправах з міді та алюмінію з «робочим» діаметром від 4 до 16 мм. Згідно з результатами досліджень встановлено напівемпіричну залежність коефіцієнта осадження R від порядкового номера елемента Z :

$$R = v_{oc}/v_{вип}, \text{ де } v_{oc} - \text{швидкість осадження,}$$

$$v_{вип} - \text{швидкість випаровування.}$$

$$v_{oc} = v_{вип} e^{BZ-C}.$$

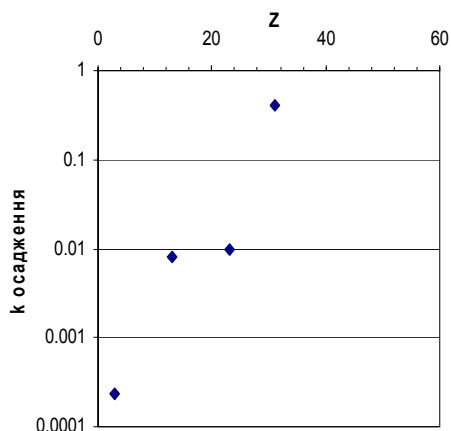


Рис. 1. Залежність коефіцієнта осадження плівок в імпульсному режимі від порядкового номера елемента.

Значення констант B та C дорівнюють відповідно: $B = 0,2693$, $C = 9,5173$ для $Z=4 \div 32$. $v_{вип}$ вираховується за формулою Ленгмюра [5] для нижчого значення діапазону температур випаровувача, які підібрані експериментально. На рис. 1 наведено результати порівняння розрахунків коефіцієнтів осадження плівок в імпульсному режимі від порядкового номера елемента з експериментальними даними для деяких елементів.

Конкретні результати урахування наведених вище умов було перевірено при дослідженні виготовленої в даній роботі мішені ^{210}Bi товщиною

$\sim 4 \text{ мг/см}^2$ (за вимірюваннями гравіметричним методом) за наведеною в цій роботі методикою напилюванням із швидкістю $22,5 \text{ мкг}/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ в імпульсному режимі зі шпаруватістю 0,4 при температурі танталового випаровувача 930 К. На цьому прикладі показано, що мішені виготовлені методом імпульсного вакуумтермічного осаджування на підкладки, які не нагріваються, мають підвищену чистоту, механічну щільність та радіаційну стійкість у порівнянні з мішенями, які виготовлені традиційним напилюванням у безперервному режимі на підігрітій підкладці.

Методика та ядерно-фізичні вимірювання

Виготовлені мішені бомбардувалися пучком іонів електростатичного перезарядного прискорювача ЕПП-10К. Продукти взаємодії пучка з мішенню досліджувались із використанням багатофункціональної експериментальної установки з дослідження ядерних реакцій [6]. До її складу входять $(\Delta E \times E)$ -телескопи заряджених частинок, які дозволяють прецизійний аналіз енергетичних спектрів за сортом зареєстрованих частинок, і комп'ютеризована система накопичення та сортування відповідної інформації. Принципові особливості аналізу елементного складу мішеней забезпечувались використанням методу зворотного резерфордівського розсіяння (ЗРР), коли аналізуються результати розсіяння прискореного пучка ядрами мішені на великі кути з великими передачами (втратами) енергії, що піддається кількісному порівнянню із конкретними кінематичними обрахунками геометрії взаємодії, енергетичних втрат продуктами розсіяння тощо.

Реєструвалися продукти розсіяння протонів та дейтронів з енергією 4 та 4,35 МеВ на мішенях різного елементного складу (CD_2 , ^{12}C , ^{60}Ni , ^{210}Bi) для кутів реєстрації 45, 70, 90, 110 та 150°. Багатий елементний склад мішеней дає змогу отримати надійну енергетичну калібровку зареєстрованих спектрів у відповідності з кінематичними розрахунками, результати яких наведено в таблиці.

Результати вимірювань

Насамперед на рис. 2 наведено двовимірні $(\Delta E \times E)$ -спектри продуктів бомбардування пучком дейтронів з енергією 4 МеВ мішені із дейтерованого поліетилену (плівка CD_2 завтовшки 50 мкг/см^2 , яка вміщує ядра вуглецю та дейтерію зі збагаченням 96 % щодо дейтерію), зареєстровані під кутами 45° (кут мішені 90° щодо бомбардуючого пучка) та 89,5° до напрямку пучка (мішень у цьому випадку поверталася на 45°).

Енергія частинок пружного розсіяння різними ядрами. $E_0 = 4 \text{ MeV}$								
Кут рес-страції, $^\circ$	$^{12}\text{C}(p, p)^{12}\text{C}$	$^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$	$\text{D}(p, p)\text{D}$	$\text{D}(d, d)\text{D}$	$^{60}\text{Ni}(p, p)^{60}\text{Ni}$	$^{60}\text{Ni}(d, d)^{60}\text{Ni}$	$^{210}\text{Bi}(p, p)^{210}\text{Bi}$	$^{210}\text{Bi}(d, d)^{210}\text{Bi}$
45	3,807	3,624	2,952	1,999	3,961	3,922	3,989	3,978
70	3,580	3,202	1,972	0,468	3,912	3,827	3,975	3,950
89,5	3,384	2,860	1,345	0,0015	3,871	3,742	3,962	3,924
110	3,190	2,536	0,899	-	3,823	3,655	3,949	3,898
150	2,920	2,124	0,508	-	3,756	3,528	3,929	3,859
Енергія частинок пружного розсіяння різними ядрами. $E_0 = 4,35 \text{ MeV}$								
Кут рес-страції, $^\circ$	$^{12}\text{C}(p, p)^{12}\text{C}$	$^{12}\text{C}(d, d)^{12}\text{C}$	$\text{D}(p, p)\text{D}$	$\text{D}(d, d)\text{D}$	$^{60}\text{Ni}(p, p)^{60}\text{Ni}$	$^{60}\text{Ni}(d, d)^{60}\text{Ni}$	$^{210}\text{Bi}(p, p)^{210}\text{Bi}$	$^{210}\text{Bi}(d, d)^{210}\text{Bi}$
45	4,141	3,941	3,210	2,174	4,307	4,265	4,338	4,326
70	3,823	3,482	2,144	0,509	4,255	4,162	4,323	4,295
89,5	3,680	3,108	1,462	0,0015	4,207	4,070	4,3085	4,268
110	3,469	2,758	0,977	-	4,158	3,974	4,294	4,239
150	3,176	2,310	0,552	-	4,085	3,837	4,273	4,197

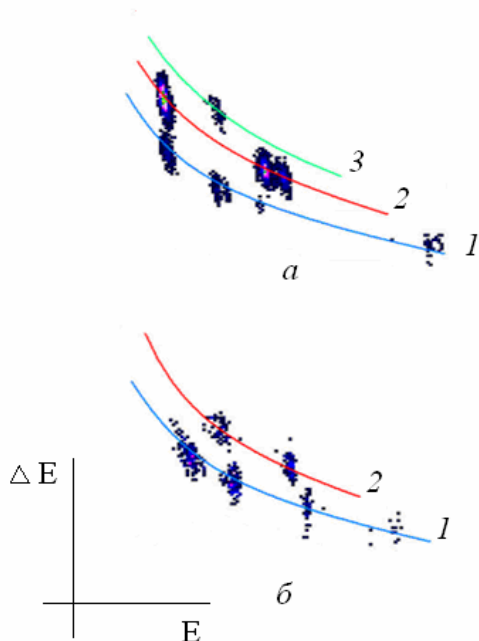


Рис. 2. Двовимірні ($\Delta E \times E$)-спектри продуктів бомбардування пучком дейтронів з енергією 4 MeV мішені із дейтерованого поліетилену, $\theta = 45^\circ$ (а) та $89,5^\circ$ (б).

Лініями позначено віртуальні місця розташування (локуси) протонів (1), дейтронів (2), тритонів (3) на площині «E» (горизонтальна вісь) \times « ΔE » (вертикальна вісь). Енергія пучка дейтронів дорівнювала 4,00 MeV. Таким чином, скупчення інформації у локусі тритонів відповідає тритієвому піку з реакції $\text{D}(d, p)^3\text{H}$. Для кута рес-страції 45° це відповідає енергії ядер тритію 3,03 MeV. У локусі дейтронів для цього кута наявні піки пружного розсіяння дейтронів на дейтерії з енергією 2 MeV, вуглеці (3,624 MeV) та більш важких елементах-домішках, які пов'язані із технологією виготовлення плівкового дейтеро-

ваного поліетилену ще «радянського» походження. У локусі протонів наявна присутність декількох піків протонів з (d, p)-реакції на вуглеці й тих самих домішках. Така ж сама площа статистичної інформації, накопиченої під кутом $89,5^\circ$, свідчить про відсутність локусу тритонів ($E_T = 0,02 \text{ MeV}$) та групи пружного dd-розсіяння ($E_d = 0,0015 \text{ MeV}$) у дейтронному локусі, що повністю відповідає кінематичним розрахункам (див. таблицю).

Для звуження кількості зареєстрованих продуктів бомбардування досліджуваних мішеней «технологічні» вимірювання виконувалися з використанням пучка протонів. На рис. 3 представлено ті ж самі ділянки двовимірних ($\Delta E \times E$)-спектрів після переходу на пучок протонів для трьох мішеней – CD_2 , ^{60}Ni та ^{12}C . Остання є дуже тонкою вуглецевою плівкою, яка технологічно використовується в прискорювачі ЕГП-10К в якості перезарядної мішені. У цих спектрах для кута рес-страції $89,5^\circ$ (кут мішені 45°) наявна присутність тільки локусу протонів із відповідними піками пружного pp-розсіяння. Необхідно звернути увагу як на різницю в товщинах мішеней (ширина відповідних піків), так й на відсутність у перезарядній мішені домішків більш важких, ніж вуглець, елементів у порівнянні з плівкою CD_2 .

Для відпрацювання методики визначення товщини мішені за енергетичними втратами заряджених частинок при її проходженні було використано мішень ^{210}Bi . На рис. 4 наведено локуси протонів пружного розсіяння на кути 45, 70, 110 та 150° для цієї мішені. Мішень розташовувалася перпендикулярно до пучка. Наявні адекватні зміни ширини піків у відповідності із зміною шляху протонів у вісмуті та відповідних енергетичних втрат.

Наведена вище якісна ідентифікація енергетичних спектрів та елементного складу мішеней

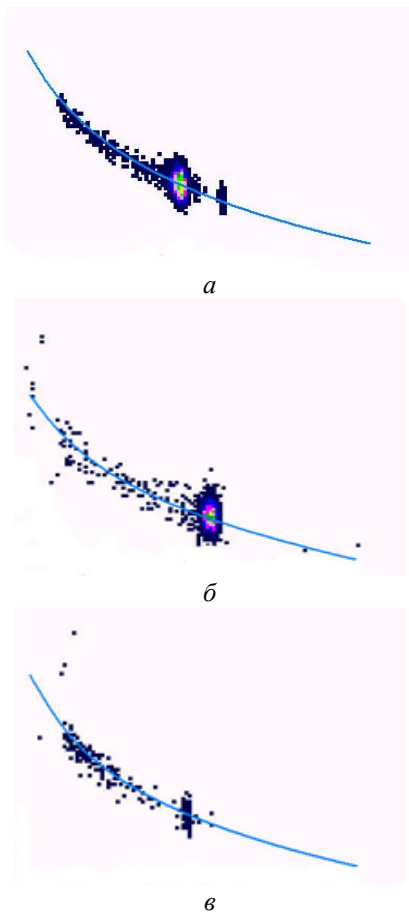


Рис. 3. Ділянки двовимірних ($\Delta E \times E$)-спектрів після переходу на пучок протонів для трьох мішеней – CD_2 (а), ^{60}Ni (б) та ^{12}C (в).

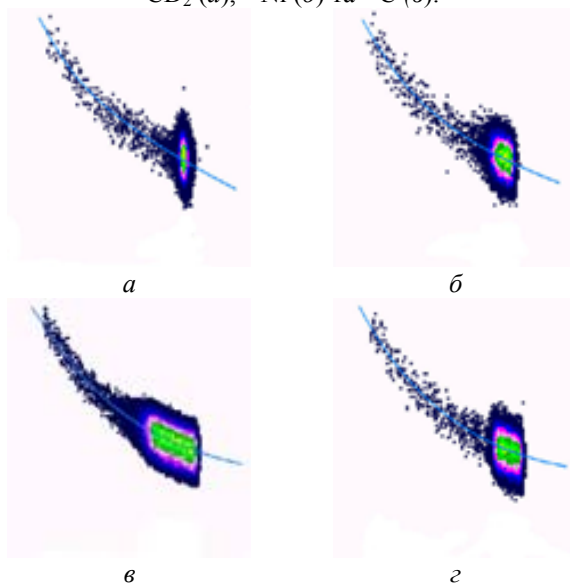


Рис. 4. Локуси протонів пружного розсіяння $^{210}Bi(p, p)^{210}Bi$ на кути 45° (а), 70° (б), 110° (в) та 150° (г).

була підґрунтям для кількісного аналізу. Комп'ютеризована система багатопараметричного аналізу даних дозволяє деталізоване сортування статистичної інформації в обраних межах наявних локусів різного сорту заряджених час-

тинок, сумування та проєкцію на обрану енергетичну вісь тощо. Усе це було пророблено з даними, які якісно було представлено на рис. 2 - 4. На рис. 5 - 7 представлено результати такого сортування для обраних локусів.

Так, спектри на рис. 5 відповідають дейтронам із пружного dd-розсіяння в дейтронному локусі, а в локусі тритонів тритієвого піка з реакції $D(d, p)^3H$. У відповідності з таблицею кінематичних розрахунків це забезпечило енергетичну калібровку спектрів та ціну каналу у 5,71 кеВ/канал.

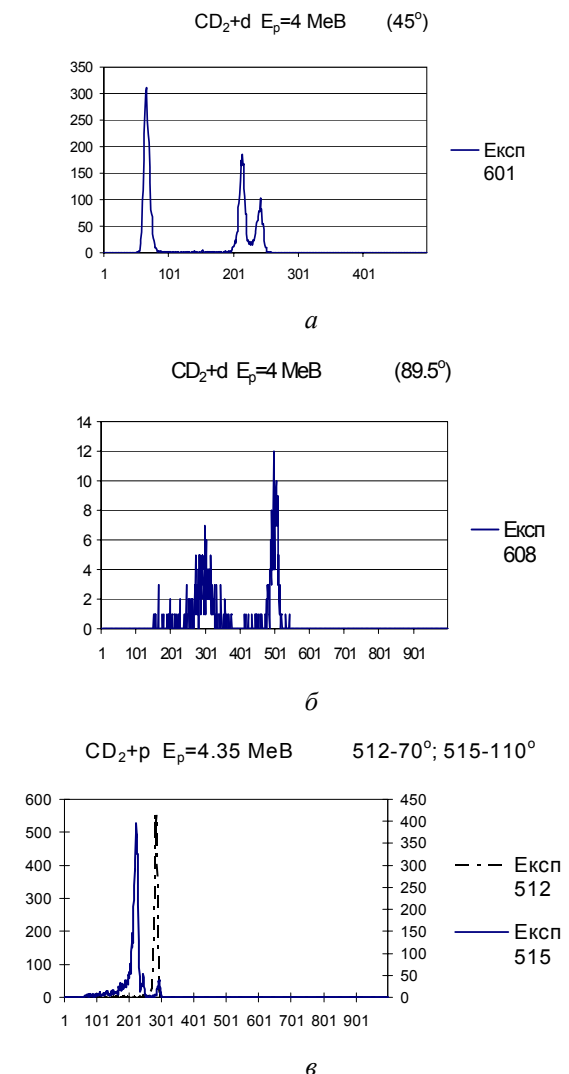


Рис. 5. Спектри пружного dd-розсіяння в дейтронному локусі. Енергія пучка 4 MeV, мішень із дейтерованого поліетилену, $\theta = 45^\circ$ (а) та $89,5^\circ$ (б). (в) - теж саме для пучка протонів з енергією 4,35 MeV й кутів 70° та 110° .

Спектри на рис. 6 за сумами відліків у піках, нормованих на показання монітора та циліндра Фарадея, дають змогу оцінити товщину дуже тонких перезарядних мішеней. Так, досліджений у цій роботі екземпляр перезарядної вуглецевої мішені має товщину ~ 23 мкг/см² (11 мкм) з точністю 20 %, яка визначається недостатньою якіс-

тю геометрії інтегрування пучка (великою відстанню до циліндра Фарадея та його малими розмірами).

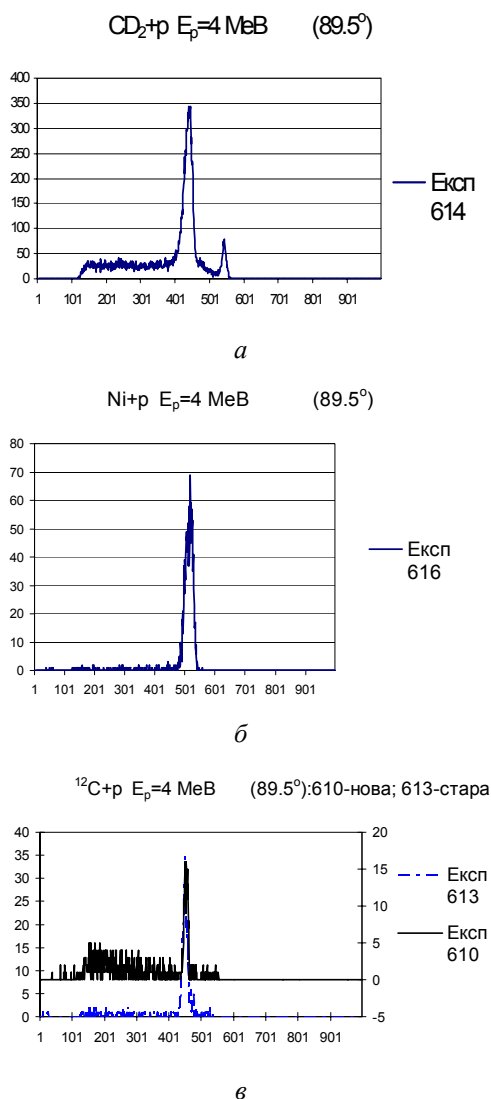


Рис. 6. Ділянки двовимірних ($\Delta E \times E$)-спектрів після переходу на пучок протонів для трьох мішеней – CD_2 (а), ^{60}Ni (б) та ^{12}C (в).

Нарешті, спектри ЗРП протонів з енергією 4,35 MeV на кути 110 та 150° (див. рис. 7) дозволяють визначити товщину вісмутуваної мішені з енергетичних втрат протонів при проходженні мішені відповідно до обраної геометрії вимірювань. Наявна суттєва різниця пробігу протонів у вісмуті для двох кутів проявляється у відповідних ширинах піків пружного розсіяння. З урахуванням цієї геометрії, відповідної кінематики взаємодії та енергетичних втрат заряджених частинок у матеріалі мішені [7] було отримано товщину мішені з ^{210}Bi у 4,222 мг/см² з використанням даних вимірювань під кутом 110° та 4,137 мг/см² для кута 150°. Наявна різниця цих двох значень становить 2 %.

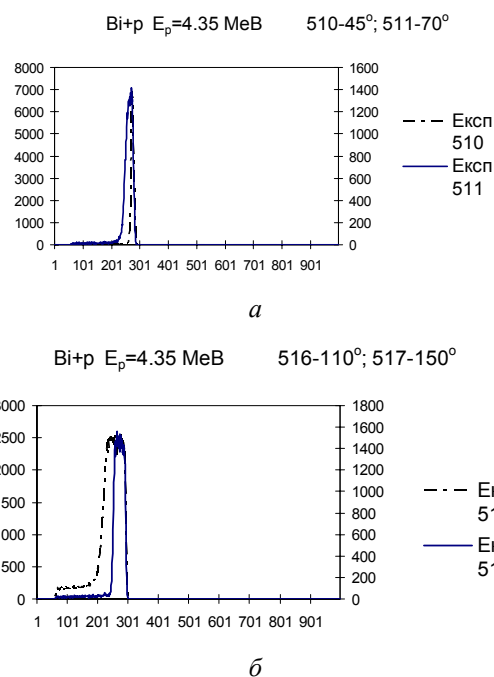


Рис. 7. Локуси протонів пружного розсіяння $^{210}Bi(p, p)^{210}Bi$ на кути 45, 70° (а) та 110, 150° (б).

Висновки

У даній роботі наведено результати пошуку та відлагодження методики й технології виготовлення, визначення й порівняння якісних та кількісних характеристик ядерно-фізичних мішеней різного застосування. Показано, що на простому технологічному обладнанні можливо отримувати мішені підвищеної елементної чистоти та міцності, використовуючи для цього метод імпульсного осадження на не підігріті підкладки. Весь набір режимів, а саме швидкість осадження, тривалість імпульсів та паузи між ними, підібрано експериментально. Швидкість осадження в даному випадку реалізує механізм пошарового росту конденсату з аморфною структурою.

У ході роботи було отримано для порівняння дані для ізотопної мішені ^{60}Ni «радянського» виробництва 1970-х років. Це безпідкладкова мішень, виготовлена методом електролітичного осадження, завтовшки ~ 90 мкг/см². Звісно, це матеріалозберігаючий метод для виготовлення ізотопних мішеней із мікровагових кількостей висхідного матеріалу. Однак порівняння спектрів, що отримані під кутом 150° на поліетилені та нікелі, свідчить про наявність у нікелевій мішені домішок елементів, які входять до складу електроліту. Аналіз наведених спектрів заряджених частинок дає змогу зробити однозначні висновки щодо адекватності запропонованої методики. Якщо в спектрах з ізотопної нікелевої мішені наявна присутність технологічних домішок складових електроліту чи вуглецеводневих

елементів можливого забруднення парами вакуумної олії, то в спектрах із нової вісмуткової мішені відсутня наявність будь-яких «зайвих» продуктів. Це доводить відповідність запропонованого методу та технології виготовлення мішеней

вимогам ядерно-фізичного експерименту. У роботі також доведено адекватність запропонованої багатопараметричної методики ядерно-фізичних вимірювань спектрів ЗРР для визначення товщини досліджуваних мішеней.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Ключарев А. П. и др.* Тонкие фольги из изотопов металлов. - М.: Энергоиздат, 1981. - 312 с.
2. *Чопра К. Л.* Электрические явления в тонких плёнках. - М.: Мир, 1972. - 63 с.
3. *Палатник Л. С., Фукс М. Я., Касевич В. М.* Механизмы образования и субструктура конденсированных пленок. - М.: Наука, 1972.
4. *Белый В. А. и др.* // Физика твердого тела. - 1975. Т. 17. - С. 3430.
5. *Дж. Кей, Леби Т.* Таблицы физических и химических постоянных. - М.: Наука, 1982.
6. Підбар'рне розсіяння дейтронів важкими ядрами / *Ю. М. Павленко, К. О. Теренецький, В. П. Вербицький, І. П. Дряпаченко, Е. М. Можжухін, В. М. Добріков, Ю. Я. Карлишев, О. К. Горпинич, В. О. Кива, О. В. Обознова* // Тез. докл. V конф. по фізиці високих енергій, ядерній фізиці і ускорителям (Харьков, 26 февр. - 2 марта 2007г.). - С. 51.
7. *Пучеров Н. Н., Романовский С. В., Чеснокова Т. Д.* Таблицы массовой тормозной способности и пробегов заряженных частиц с энергией 1 - 100 МэВ. - К.: Наук. думка, 1975. - 296 с.

ИЗГОТОВЛЕНИЕ И ИССЛЕДОВАНИЕ СОСТАВА ИЗОТОПНЫХ БЕСПОДКЛАДОЧНЫХ МИШЕНЕЙ ПОВЫШЕННОЙ ЧИСТОТЫ И РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ ДЛЯ ПРЕЦИЗИОННЫХ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

В. Б. Бондаренко, И. П. Дряпаченко, Л. П. Кацубо, Г. Н. Козеряцкая, Э. Н. Можжухин, Ю. Н. Павленко, И. В. Посмитюх, О. В. Хвастунов, А. Ф. Шаров

Описана методика изготовления мишеней из изотопных материалов с температурой плавления до 2300 °С с использованием вакуумной напылительной установки ВУП-5М после её соответствующей модернизации. Исследован состав мишеней с использованием ядерно-физических измерений продуктов обратного резерфордского рассеяния (ОРР) ускоренных ионов. Толщина мишеней определялась как гравиметрическим методом, так и методом ОРР.

THE MANUFACTURE AND COMPOUND INVESTIGATION OF THE ISOTOPE SUPPORTLESS TARGETS WITH HIGHER PURITY AND RADIATION DURABILITY FOR THE NUCLEAR PHYSICS EXPERIMENTS

V. B. Bondarenko, I. P. Dryapachenko, L. P. Katzubo, G. M. Kozeryatska, E. M. Mozzhukhin, Yu. M. Pavlenko, I. V. Posmityukh, O. V. Khvastunov, O. F. Sharov

Method is presented for target manufacturing from the isotope materials with melting temperature up to 2300 °С. Vacuum evaporation unit (VUP-5M) was used after the appropriate modernization. Target compound determination with using of the nuclear physics measurements of the Rutherford back scattering (RBS) of the accelerated ions was studied. The target thickness was determined as gravimetric as RBS methods.

Надійшла до редакції 13.03.07,
після доопрацювання – 04.04.07.