

**ОБЕСПЕЧЕНИЕ ОПТИМАЛЬНЫХ УСЛОВИЙ  
ДЛЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТОНКИХ СВОБОДНЫХ МИШЕНЕЙ  
ИЗ ИЗОТОПОВ ХРОМА, СКАНДИЯ, ЦИРКОНИЯ, ЖЕЛЕЗА, МЕДИ**

**Ю. В. Кибкало, В. П. Токарев**

*Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев*

Методом термического распыления приготовлены и исследованы свободные пленки (мишени) из тугоплавких изотопов хрома, скандия, циркония, железа, меди текстурированных структур. Полученные пленки площадью около  $2 \text{ см}^2$ , толщиной  $\leq 0,5 \text{ мг/см}^2$ , однородностью около 1 % и высокой чистоты обеспечивают возможность изучения ядерных реакций с требуемой прецизионной точностью измерения.

**Введение**

Экспериментальные исследования взаимодействия ускоренных частиц с атомами и ядрами всегда связаны с использованием изотопных мишеней различных химических элементов. Исторически потребность в моноизотопных мишенях возникла в связи с непрерывным развитием ускорительной техники на базе многоцелевых ядерно-физических исследований в области атомного ядра, ядерной технологии, химии и химической технологии. В ядерной физике стабильные и радиоактивные изотопы используют в качестве мишеней при облучении их заряженными частицами, нейтронами,  $\gamma$ -квантами и т. д. с целью изучения природы ядерных сил и структуры атомного ядра. По своим химическим свойствам изотопы любого элемента достаточно близки, но в ядерных реакциях проявляют существенное изменение ядерно-физических характеристик от ядра к ядру. По этой причине эксперименты проводятся на мишенях с разделенными изотопами. При изготовлении таких изотопных мишеней методом термического распыления разнообразных по химическим и физическим свойствам элементов таблицы Менделеева возникают многочисленные трудности. Это связано с тем, что при напылении мишеней переход испаряемого вещества с конденсированного состояния в паробразное является сложным многофазным термодинамическим и трудно регулируемым в эксперименте физическим процессом, существенно влияющим на однородность распределения и скорость диффузии паров. Благоприятные условия испарения трудно реализовать при напылении различных изотопов с тем, чтобы получить и в дальнейшем использовать для этого процесса такие оптимальные параметры, как температура (Т), давление насыщенных паров ( $p^*$ ) и др. Поэтому настоящей экспериментальной задачей и было обеспечить условия достижения термодинамического равновесия при распыле-

нии, когда два состояния вещества, конденсированная фаза и ее пар находятся при одной и той же температуре в контакте одна с другой без каких-либо изменений во времени. Это означает, что количество испаряемого вещества должно равняться количеству конденсированного вещества на протяжении того времени, пока поддерживается равновесие. В таких условиях нагреваемые твердые тела характеризуются определенным давлением паров, которое зависит только от температуры. При этом скорость испарения не может превышать некоторой границы, пропорциональной равновесному давлению пара. Таким образом, равновесное давление насыщенного пара над поверхностью конденсированной фазы является важной экспериментальной величиной, достижение которой дает возможность обеспечить оптимальные условия испарения вещества, однородность его распыления и температуру, при которой достигаются максимальные скорости испарения.

На практике важной величиной испарения вещества является не общая интенсивность излучения с испарителя, а интенсивность испарения в заданном направлении, определяемом углом  $\varphi$  и в некотором телесном угле  $d\omega$ , что можно представить аналитически как  $dM_e(\varphi) = M_e \cos\varphi d\omega/\pi$ , где  $M_e$  - общее количество испаряемого вещества. То есть испарение вещества на подложку происходит не равномерно во всех направлениях, а преимущественно в направлении, близком к нормали к испаряющей поверхности, где  $\cos\varphi$  имеет максимальную величину и происходит оно по косинусоидальному закону, который можно представить выражением  $dM_r/dA_r = M_e/4\pi r^2 \cos\theta$ , где  $dM_r$  - масса вещества, которая осаждается на единицу площади подложки  $dA_r$ ,  $\theta$  - угол падения,  $r$  - расстояние испарителя до подложки. Получение однородной толщины напыляемой пленки достигается при условиях, что  $\cos\theta = 1$  и  $r = \text{const}$ , поэтому при напылении пленок используется подложка сферической формы.

Чтобы осуществить процесс испарения вещества в вакууме, необходимо иметь испаритель, который бы содержал в себе испаряемое вещество и поддерживал его при температуре, достаточной для получения необходимого давления пара. Для оценки рабочих температур испарителей основываются на необходимости поддержания условия постоянного равновесия давления пара испаряемого материала порядка  $10^{-2}$  мм рт. ст. для получения оптимальных скоростей осаждения пленки [1]. Чтобы предотвратить загрязнение осаждаемых пленок материалом испарителя, последний должен иметь при рабочей температуре незначительное давление паров и давление диссоциации. Материалы, которые отвечают этим требованиям, это обычно тугоплавкие металлы и окислы [2, 3]. Дальнейший выбор среди этих категорий осуществляется с учетом вероятности образования сплавов (эвтектики) и возможности возникновения химических реакций между материалом испарителя и испаряемым веществом. Образование эвтектики сопровождается значительным уменьшением температуры плавления, что приводит к быстрому разрушению испарителя (тигля). В результате химических реакций образуются легкоиспаряемые соединения в виде окислов, которые загрязняют пленку. Совместимость испаряемого вещества с тугоплавким металлом тигля определяется с помощью изучения фазовых диаграмм состояний обоих материалов. Комбинация металлов должна иметь очень низкую взаимную растворимость и тугоплавкую эвтектику. Проблемы поиска химически инертных испарителей не возникает в тех случаях, когда температура испарения вещества, при которой достигается равновесное давление пара  $10^{-2}$  мм рт. ст., близка или меньше температуры его плавления, т. е. когда достигаются условия сублимации. Сублимационная технология процессов осаждения используется для получения наиболее чистых пленок [4].

### Экспериментальная процедура и результаты

В данной работе проведены экспериментальные исследования возможности изготовления на универсальной вакуумной установке ВУП-5М [5] качественных свободных мишеней площадью  $\leq 2$  см<sup>2</sup> и толщиной  $\leq 0,5$  мг/см<sup>2</sup> из тугоплавких изотопов хрома, скандия, циркония, железа, меди за приемлемое время около 1 ч. Особенность этих изотопов состоит в том, что большинство из них имеют малое давление насыщенных паров при температурах их плавления, из-за чего время напыления составляет несколько десятков часов. В этом случае, особенно для хороших сорбентов

типа циркония, в результате получают слоистые пленки карбидированных окислов даже при давлении остаточных газов  $p \sim 10^{-8}$  мм рт. ст. Причем скорость осаждения пленок является величиной очень критичной к температуре при реализации механизма послойного роста осаждаемого конденсата текстурированной структуры повышенной чистоты и однородной по плотности [6]. Очевидно, для получения чистых пленок за приемлемое время около 1 ч испарение этих изотопов необходимо проводить при температурах, превышающих их температуру плавления (особенно для циркония). При этом вследствие заметной взаимной растворимости материалов напыляемого вещества и испарителя (тигля) возникает опасность загрязнения конденсата веществом тигля и эвтектики. В случае легкоплавких материалов при благоприятном соотношении растворимости примесей в жидком и твердом состояниях (например, для систем Au-W, Cu-W и ряда других) удастся подобрать необходимое для удовлетворительной чистоты пленок сочетание материалов испаряемого вещества и тигля в интервале температур испарения. Однако в случае тугоплавких веществ из-за близости температур плавления вещества и тигля возникают особые сложности, связанные с возможным загрязнением получаемых пленок материалом тигля и эвтектики. Полученные таким способом мишени становятся совершенно непригодными для изучения близких значений эффективных сечений ядерных реакций на исследуемом изотопе и его примесях. В данных исследованиях из анализа температурных диаграмм этих систем [7, 8] подобраны соответствующие пары материалов вещества и тигля, пригодные для изготовления пленок необходимой чистоты.

Целью настоящих исследований была разработка относительно простых экономичных способов приготовления за короткое время около 1 ч чистых свободных пленок из этих материалов с параметрами, которые обеспечивают изучение ядерных реакций с высокой точностью измерений на ускорителях заряженных частиц института: У-120, У-240, ЭПГ-10К и реакторе ВВР-М.

Изготовлены все свободные мишени методом термического распыления на стекло с тонким подслоем NaCl и окончательным вылавливанием их в дистиллированной воде. Предварительно стекло промывали в 5 %-ном растворе хромовой смеси, обезжиривали в ванной извести и выдерживали в нормальном растворе соды. Визуальные наблюдения и контроль в процессе нагрева и распыления образцов проводились с помощью зрительной трубы большой светосилы. Масса получаемых пленок измерялась микровзвешива-

нием их на аналитических весах с точностью 5 %. Определялась совместимость материалов тиглей и испаряемого вещества с помощью анализа их фазовых диаграмм и подбирались комбинации этих материалов, чтобы они имели очень низкую взаимную растворимость и тугоплавкую эвтектику.

Предварительно толщина осаждаемого слоя (Т) оценивалась из геометрии опыта по эмпирическому соотношению

$$T = \frac{M \cos \Theta^0}{4\pi R^2 \rho},$$

где М – общая масса испаряемого материала;  $\Theta^0$  – угол наклона подложки к испарителю;  $\rho$  – плотность испаряемого материала; R – расстояние от испарителя до подложки.

Контроль температуры проводился с помощью индикатора температуры, состоящего из термоэлектрического преобразователя (хромель-алюмель), усилителя и цифрового индикатора.

Для обеспечения однородности толщины напыляемых пленок около 1 % образцы испаряемых материалов располагались на расстоянии 6 см от подложки по сфере. Чистота получаемых пленок оценивалась измерением их удельных сопротивлений двухзондовым методом с точностью < 1 % [9].

Для изотопов хрома, температура плавления которого 1900 °С, было найдено, что он имеет высокие скорости сублимации уже при температуре 1400 °С, при этом достигается максимальное парциальное давление паров  $p^* = 10^{-2}$  мм рт. ст., поэтому распыляемое вещество не перегревалось. Поскольку хром химически малоактивен, то для термического распыления использован тигель из тантала, имеющего достаточную для этого процесса температуру плавления 3000 °С. Получены пленки высокой чистоты с однородностью  $\leq 1$  % и толщиной  $\leq 350$  мкг/см<sup>2</sup>.

Изотопы скандия имеют температуру плавления 1539 °С. При этом из-за химической активности при нагревании и вследствие заметной взаимной растворимости материала испаряемого вещества и тигля, образующих эвтектику, в качестве тигля использовался высокоплавкий вольфрам с температурой плавления 3377 °С. Термическое распыление производилось на Al-подложку. Мишени отделялись в растворе щелочи. Толщина мишеней составила  $\leq 450$  мкг/см<sup>2</sup>.

Температура плавления циркония 1900 °С. Он слабо смачивает и реагирует с вольфрамом. Поэтому для испарения использовался метод нагрева током проводимости лодочки из вольфрама.

Поскольку цирконий имеет малое давление насыщенных паров при температуре плавления, то для создания оптимальных условий, при которых достигается  $p^* = 10^{-2}$  мм рт. ст., испарение проводилось с перегревом расплава до 2400 °С. Получены мишени толщиной  $\leq 370$  мкг/см<sup>2</sup>.

Изотопы железа имеют температуру плавления 1536 °С. Образуют сплавы со всеми тугоплавкими металлами и разрушают их. Поэтому металл не расплавлялся, а нагревался лишь до 1400 °С, использовалось его свойство сублимировать. В качестве материала испарителя применялся вольфрам как наиболее устойчивый к взаимной растворимости. Полученная толщина мишеней составила  $\leq 240$  мкг/см<sup>2</sup>.

Изотопы меди имеют температуру плавления 1084 °С. При перегреве их до температуры 1260 °С достигается максимальное парциальное давление паров. Поскольку медь не взаимодействует с тугоплавкими металлами, то предпочтительным материалом тигля является молибден, так как он легко обрабатывается механически и обладает хорошей теплопроводностью. Кроме того, в интервале температур распыления молибден имеет очень низкое парциальное давление паров менее  $10^{-6}$  мм рт. ст. [10], что не вносит загрязняющие примеси в осаждаемые пленки. Таким образом методом термического испарения изготовлены чистые свободные пленки из меди толщиной  $\leq 300$  мкг/см<sup>2</sup>.

Пленки из меди получены также методом механического проката, как наиболее экспрессного и экономичного метода, с предварительным отжигом их в муфельной печи и с применением тонких прокатных пластин из молибдена. Получены чистые, механически прочные и однородные по профилю толщины пленки  $\leq 10$  мкг/см<sup>2</sup>.

С целью изучения выхода электронов околонулевой энергии  $e_0$  от толщины источников при их радиоактивном распаде изготовлены для отдела ядерной спектроскопии очень тонкие мишени из различных изотопов скандия, циркония, хрома, железа, цинка. Напыление проводилось на тонкие алюминиевые подложки < 10 мкм в виде пятна диаметром 15 мм и разных толщин напыляемого вещества < 20 мкг/см<sup>2</sup>. Полученные образцы мишеней облучались нейтронами на реакторе ВВР-М для дальнейших исследований различных видов радиоактивного распада их методом ( $e\gamma$ )-совпадений.

## Выводы

Найдено, что скорость осаждения пленок является величиной очень критичной к необходимому и достаточному условию термодинамиче-

ского равновесия процесса испарения и к определенной критической температуре при реализации механизма послойного роста осаждаемого конденсата повышенной чистоты и однородного

по плотности. Получены за приемлемое время чистые, механически прочные и однородные мишени из различных тугоплавких изотопов для проведения ядерно-физических исследований.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Honig R.E.* // RCA Rev. - 1962. - Vol. 23. - P. 567.
2. *Holland L.* Vacuum Deposition of Thin Films. New York: John Wiley and Sons. Inc., 1961.
3. *Behrndt K. H.*, Techniques of Metals Research. New York: Interscience Publishers. Inc., 1968.
4. *Behrndt K.H.* // J. Appl. Phys. - 1962. - Vol. 33. - P. 193.
5. *Заика Н.И., Токарев В.П., Оношко Н.Ф. и др.* Отчет "Исследование характеристик ядерных и перезарядных мишеней". - К., ИЯИ АН Украины, 1993 - 1995 гг. - С. 1 - 23.
6. *Заика Н.И., Токарев В.П.* Изготовление изотопных мишеней в Институте ядерных исследований. - Киев, 1997. - 12 с. - (Препр. / НАН Украины. Ин-т ядерных исслед.; КИЯИ-97-6).
7. *Handbook of Thin Film Technology.* Edited by Leon I. Maissel and Reinhard Glang. McGraw Hill Book Company, 1970.
8. *Дадыкин А.А., Заика Н.И., Токарев В.П.* Экономичный и быстрый способ получения чистых пленок из тугоплавких изотопов для ядерно-физических исследований // Зб. наук. праць Ін-ту ядерних досл. - 2002. - № 1(7). - С. 170 - 174.
9. *Курносав А.И., Юдин В.В.* Технология производства полупроводниковых приборов. - Л.: Судостроение, 1965. - С. 169.
10. *Kohl W.H.* Handbook of Materials and Techniques for Vacuum Devices. - New York: Reinhold Publishing Corporation, 1967.

### ЗАБЕЗПЕЧЕННЯ ОПТИМАЛЬНИХ УМОВ ДЛЯ ВИГОТОВЛЕННЯ ТОНКИХ ВІЛЬНИХ МІШЕНЕЙ ІЗ ІЗОТОПІВ ХРОМУ, СКАНДІЮ, ЦИРКОНІЮ, ЗАЛІЗА, МІДІ

Ю. В. Кібкало, В. П. Токарев

Вільні плівки (мішені) з тугоплавких ізоотопів хрому, скандію, цирконію, заліза, міді текстурованих структур виготовлено методом термічного розпилення й досліджено. Отримані плівки площею близько 2 см<sup>2</sup>, товщиною ≤ 0,5 мг / см<sup>2</sup>, однорідністю близько 1 % і високої чистоти забезпечують можливість вивчення ядерних реакцій із необхідною прецизійною точністю вимірювання.

### PROVISION OF OPTIMUM REQUIREMENTS FOR PREPARATION OF THIN FREE TARGETS FROM ISOTOPES OF CHROMIUM, SCANDIUM, ZIRCONIUM, IRON, COPPER

Yu. V. Kibkalo, V. P. Tokarev

Free films (targets) from high-melting chromium, scandium, zirconium, iron, copper isotopes of textured structures are prepared and explored by the method of thermal sputtering. About 2 cm<sup>2</sup> films of ≤ 0,5 mg/cm<sup>2</sup> thickness with homogeneity about 1 % and high cleanness ensure the opportunity to study nuclear reactions with the required precision measurement accuracy.

Поступила в редакцію 22.10.07,  
после доработки – 09.04.08.