

T-564

19/2/18

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

13 - 4083



И.Томикова

ЛАБОРАТОРИЯ НЕЙТРОННОЙ ФИЗИКИ

МЕТОДЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТОНКИХ МИШЕНЕЙ
БОЛЬШОЙ ПОВЕРХНОСТИ

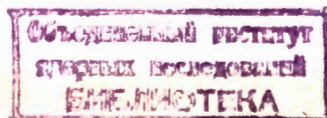
1968

13 - 4083

И.Томикова

МЕТОДЫ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТОНКИХ МИШЕНЕЙ
БОЛЬШОЙ ПОВЕРХНОСТИ

Направлено в ПТЭ



4556/2 чр.

В в е д е н и е

Основной задачей настоящей работы была разработка методов получения на подложках больших поверхностей ($\geq 500 \text{ см}^2$) равномерных слоев из различных элементов с контролируемой толщиной слоя (до $5-7 \text{ мг/см}^2$). Методы должны были позволять регенерировать вещества с минимальными потерями, поскольку в ряде случаев использовались дорогостоящие элементы и разделенные изотопы. Из литературы известен ряд методик, с помощью которых обычно изготовлялись мишени небольших поверхностей, однако эти методики не всегда пригодны для получения мишеней больших поверхностей, кроме того описания их разбросаны по отдельным журналам и препринтам. Здесь описывается несколько методик, опробованных в наших условиях. Часть из них применялась ранее для получения мишеней малых поверхностей или очень тонких слоев и подверглась изменениям применительно к нашей задаче. В некоторых случаях удалось получить слои на подложках менее дефицитных, чем описывалось ранее (например, платина заменялась медью). Круг элементов, из которых изготовлялись мишени, довольно широк и определялся физическими задачами — поисками реакции (n, α) на резонансных нейтронах.

Здесь описываются как известные ранее, так и разработанные нами методы получения слоев из Nd , Sm , Eu , Te , Mo , Zn , Ru , Os .

I. Механический метод нанесения слоев

Во всех случаях, кроме Ru и Os, был использован метод механического нанесения кисточкой раствора соединения, содержащего необходимый элемент с добавками органических связующих веществ /1/. Этот метод позволял нам наносить на большие поверхности (500-1000 см²) слой толщиной от 200 мкг/см² до 5 мг/см².

Получение мишеней из редких земель и цинка

Приготовление раствора. В случае редкоземельных элементов и цинка для приготовления раствора служили растворимые в этиловом спирте нитраты типа $M(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$, где $M = Sm$, ^{147}Sm , ^{149}Sm , Nd , ^{143}Nd , ^{145}Nd , Eu или $Zn(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$. Концентрацию нитратов желательно поддерживать не выше 40 мг/мл при толщине слоя 1-5 мг/см² и 5 мг/мл при толщине слоя 200-500 мкг/см². На каждые 100 мл полученного раствора при помешивании добавляется клей в количестве 2 мл, приготовленный путем растворения нитроклетчатки (2%-ной) в амилацетате, который разбавляется ацетоном в отношении 2:3. Заметим, что равномерность и прочность нанесенных слоев в значительной мере зависит от качества приготовленного раствора, числа нанесений и обработки подложки. В качестве подложки нами, как правило, использовались пластинки алюминия толщиной 0,1 мм.

Подготовка поверхности. Способ обработки поверхности зависит от толщины слоя, который предстоит нанести. При нанесении тонких слоев (300-500 мкг/см²) поверхность алюминиевой подложки полировалась, в случае получения более толстых слоев - обрабатывалась наждачной бумагой N° 60, а затем N° 80, в результате чего достигалось более прочное сцепление слоев с подложкой. Подложки непосредственно перед нанесением очищались ацетоном и обезжиривались для того, чтобы первый слой, качество которого определяет равномерность и прочность нанесения последующих слоев, был прочным.

Нанесение слоя. Методика получения слоев механическим способом заключается в многократном нанесении слоев при помощи кисточки на подложку каждый раз с выжиганием связующих органических веществ и переводом основного вещества в соответствующую нерастворимую окись. Для удаления с поверхности выгоревшей органики каждый слой слегка протирается ваткой, смоченной в ацетоне. Температуру для полного разложения нитратов редкоземельных элементов и цинка в соответствующие окислы (M_2O_3 и ZnO) нужно поддерживать в пределах 480° – $510^{\circ}C$. Время прокаливания 5–7 минут. Хорошие и прочные слои получались при толщине до 5 мг/см^2 , при толщине слоя выше 5 мг/см^2 окись становится непрочной и легко снимается ваткой. Достигая 7 мг/см^2 , слои начинают трескаться и отваливаются. Число нанесений может быть от 40 до 100 в зависимости от необходимой толщины слоя.

Удаление слоя. После измерений окись снимается растворением в концентрированной азотной кислоте, при этом опять получаются соответствующие нитраты. Время растворения зависит от толщины слоя. При растворении слоев, которые наносились на алюминиевые пластинки, обработанные наждачной бумагой, в раствор может переходить и алюминий. Поэтому, чтобы избежать растворения больших количеств алюминия, нерастворившиеся совсем остатки окиси тщательно снимались ватками, а затем для уменьшения потерь улавливались. Полученные нитраты можно опять перевести в окись. Увеличение или уменьшение потерь в большей степени зависит от аккуратности работы как при нанесении слоев, так и при их снятии. В нашей практике потери основного вещества после снятия с подложек составляли 7–10%.

Применить другие известные методы нанесения этих элементов^{/2,3/} в наших условиях не удавалось из-за нескольких причин.

Метод электролитического осаждения из водного раствора^{/2/} на металлическую подложку мешали применить 1) материал катода, которым должен быть никель, серебро, платина, тантал (в нашем случае подложкой могли быть только медь или алюминий); 2) величина поверхности, которая примерно в 100 раз была больше величины поверхностей, покрытых с помощью метода электролитического осаждения^{/2/}.

Метод электролитического осаждения из органического раствора /3/ позволяет провести нанесение на алюминиевую подложку, но его можно применять только для покрытия небольших поверхностей ($\approx 6 \text{ см}^2$), причем максимальная толщина прочного слоя, получаемая неоднократным осаждением, каждый раз с переходом в окись при температуре $490\text{--}500^\circ\text{C}$ не превышает 1 мг/см^2 .

Изготовление теллуровых мишеней

Исходным веществом для приготовления теллуровых мишеней была теллуровая кислота. Из нее приготавливался раствор в дистиллированной воде так, чтобы 1 мл раствора содержал не больше чем 25 мг кислоты. Связующим органическим веществом служил пищевой желатин, который добавлялся в количестве 50 мг на каждые 100 мл заранее приготовленного раствора. Методика нанесения и подготовки подложек была той же, что и в случае изготовления слоев из редких земель. Площадь пластинок составляла 550 см^2 . Температуру прокаливания для перевода кислоты в двуокись теллура (TeO_2) /4/ поддерживали в пределах $600\text{--}610^\circ\text{C}$, не допуская ее повышения, так как она близка к точке плавления алюминия. (В случае перегрева алюминий становится хрупким и легко ломается). Самые хорошие и прочные слои получались при количестве окиси теллура в слое 2–3 мг/см^2 . Число нанесений при этой толщине – около 100. При толщинах более 3 мг/см^2 окись начинает легко удаляться ваткой. Хотя температура полного разложения теллуровой кислоты довольно высокая, этот метод для нас оказался самым удобным. Попытки нанести теллур на металлическую подложку электролитическим путем /4,5/ не дают хороших результатов, так как он очень плохо держится на подложке и выход по току бывает очень невысокий.

Изготовление молибденовых мишеней

Исходным веществом для приготовления раствора служит как молибдат аммония, так и трехокись молибдена. Трехокись молибдена можно

перевести в молибдат аммиаком. Молибдаты аммония хорошо растворимы в воде. Концентрация молибдата в дистиллированной воде была 35 мг/мл. В качестве связывающего органического вещества был добавлен желатин в количестве 50 мг на каждые 100 мл раствора. Температура прокаливания молибдата до трехоксида составляла 500–520°C. Хорошие и прочные слои получались при количестве окиси в слое 3–5 мг/см². При толщине слоя выше 5 мг/см² окись легко стирается.

Вторая возможность нанесения молибдена на металлическую подложку – электролитическим способом в виде полуторной окиси молибдена – $\text{Mo}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ /6,7/ не всегда удобна, потому что большое влияние на процесс осаждения слоя окиси молибдена желательной толщины оказывает материал катода. Более или менее компактные осадки получаются на платине, цинке и активированной стали. Однако такие подложки не всегда подходят к условиям эксперимента.

II. Электролитический метод изготовления

рутениевых и осмиевых мишеней на медной подложке

Электролитическое покрытие рутением можно получить;

- 1) из растворов солей /8/;
- 2) анодным растворением в щелочной среде /8,9/.

Первый метод сложен тем, что требует соединений, приготовление которых представляло для нас ряд серьезных затруднений.

Второй способ более прост, поскольку использует металлический рутений, однако он разработан для получения слоев малых размеров на подложке из такого дефицитного материала как платина. Взяв второй способ за основу, мы разработали метод для получения слоев рутения на меди.

Методика нанесения и подготовка подложек

Порошкообразный рутений прессуется в небольшом количестве (250–300 мг) вместе с платиновой проволокой (Ø 0,5–0,2 см) в таблетки Ø 15 мм при давлении 90 атм. Приготовленные таким образом таблетки подвешивают

ваются на платиновых проволоках в 0,1N растворе KOH по 8 штук с каждой стороны медной пластины размером 230x230 мм толщиной 0,1 мм и служат анодом. Пластины перед нанесением на них рутения травятся в 50%-ном растворе азотной кислоты около одной минуты, после чего ополаскиваются дистиллированной водой. Осаждение идет при комнатной температуре, плотность тока составляет 6-8 ма/см². Рутений переходит в раствор в виде рутената калия и осаждается на катоде в виде серо-черного осадка.

В процессе осаждения следует удалять пузырьки водорода, которые оставляют на пластинках следы в виде полосок и препятствуют дальнейшему осаждению рутения. После окончания электролиза пластинки споласкиваются дистиллированной водой и сушатся при комнатной температуре. Покрытие хорошего качества с серо-черным металлическим блеском и хорошим сцеплением с подложкой получается при толщине слоя 1-1,5 мг Ru /см². При дальнейшем осаждении рутения поверхность становится матовой. Когда толщина слоя достигнет 3 мг/см², поверхность слоя становится непрочной - "пачкается".

Этот способ можно применить и в случае покрытия медной подложки осмием. Разница в том, что осаждение осмия происходит при повышенной температуре (60-70°C) и плотности тока 2-3 ма/см². Хорошие покрытия с металлическим блеском получаются при толщине слоя до 1 мг/см².

В процессе дальнейшего осаждения осадок становится рыхлым, черного цвета и сильно пачкается. Самые хорошие покрытия, очень прочные, с металлическим блеском достигаются при использовании полированной меди и слоя осмия толщиной 0,5 мг/см². С нашей точки зрения, к недостаткам этого метода относится невозможность получения более толстых покрытий. Однако он имеет и большое преимущество перед другими методами, поскольку позволяет проводить нанесение не только на благородные металлы, которые в нужных количествах практически невозможно достать.

Л и т е р а т у р а

1. Г.И. Хлебников, Е.П. Дергунов. Атомная энергия, т.9, 406 (1960).
2. N-E Båring. *Electrodeposition of Actinide and Lanthanide Elements*, Stockholm, Sweden, 1966.
3. Б.А. Гвоздев, Ю.Т. Чубурков. *Радиохимия*, №5, 673 (1963).
4. А.А. Кудрявцев. *Химия и технология селена и теллура*. Изд-во "Высшая школа", 1961.
5. Д.М. Чижиков, В.П. Счастливым. *Теллур и теллуриды*. Изд-во "Наука", Москва, 1966.
6. А.Г. Самарцев, Э.И. Левитина. *Журнал физ. хим.*, №5, 1023 (1958).
7. А.С. Гончаренко. *Ж. прикл. хим.*, №4, 915 (1964).
8. О.Е. Звягинцев, Н.И. Колбин, А.Н. Рябов, Т.Д. Автократова, А.А. Горюнов. *Химия рутения*. Изд-во "Наука", Москва, 1966.
9. Т.Н. Стояновская. *Вестник МГУ, сер. хим.*, №5, 30 (1962).
10. А.Н. Гинберг. *Гальванотехника*, Судопромгиз, Ленинград, 1956.

Рукопись поступила в издательский отдел
25 сентября 1968 года.