

СЗУУ.Уа

Б-94

ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА



3488 / 2-76

6/ix-76

P13 - 9783

Ю.Бух, Н.И.Балалыкин, А.В.Скрыпник,
В.В.Катрасев

ПЛЕНКИ ^{238}U ДЛЯ МИШЕНЕЙ

1976

P13 - 9783

Ю.Бух, Н.И.Балалыкин, А.В.Скрыпник,
В.В.Катрасев

ПЛЕНКИ ^{238}U ДЛЯ МИШЕНЕЙ

Направлено в "Nuclear Instruments and Methods"

Объединенный институт
ядерных исследований
БИБЛИОТЕКА

Во многих экспериментах ядерной физики используются мишени из элементов ряда актиноидов Th, U, Pu, Am и др. В последнее время такие мишени широко применяются в работах, связанных с синтезом сверхтяжелых элементов на ускорителях тяжелых ионов /1/.

Технология приготовления мишеней разнообразна - вакуумное испарение /2,3/, распыление /4,5/, нанесение из органических растворов /6/, электролитическое нанесение в водных /7,8/ и органических /9-13/ растворах. Каждая из упомянутых технологий имеет свои преимущества и недостатки, которые проявляются в свойствах полученных пленок: равномерности по толщине, адгезии, механической прочности, кристаллической структуре, химическом составе.

Предлагаемая работа посвящена вопросам разработки технологии получения пленок урана испарением в вакууме с целью использования их в качестве мишеней. Основное внимание было уделено изучению кристаллической структуры пленок и влиянию вакуумных условий в процессе испарения на химический состав конденсатов. Изготовленные в Отделе новых методов ускорения ОИЯИ пленки урана на различных подложках применяются и в других лабораториях Института для различных ядерных экспериментов.

Получение пленок урана осуществлялось в вакуумной камере с использованием электронно-плазменного /ЭП/ испарителя. Конструкция, работа и характеристики ЭП испарителя приведены в работах /14-16/. Первая серия пленок урана была получена при давлении в камере $2 \cdot 10^{-5}$ Тор /использовался диффузионный насос с водоохлаждаемой ловушкой/. При изготовлении второй серии

пленок ловушка охлаждалась жидким азотом, что позволило улучшить вакуум до $3 \cdot 10^{-6}$ Тор. Анод-тигель испарителя загружался ^{238}U . Скорость конденсации пленок урана изменялась в пределах $80 \div 300 \text{ \AA мин}^{-1}$ при несамостоятельном режиме работы испарителя и достигла $650 \div 670 \text{ \AA мин}^{-1}$ при самостоятельном режиме. Измерение скоростей конденсации производилось на высоте 10 см. Урановые пленки для мишеней наносились на подложки из Cu, Au, Al. В качестве контрольных использовались подложки из Si, Be и стекла при комнатной температуре.

Фазовый анализ полученных конденсатов проводился на рентгенодифрактометрической установке ZEISS с использованием рентгеновского излучения с длиной волны $\lambda = 1,542 \text{ \AA}$. Химический состав исследовался на разработанной в ОНМУ установке для упругого рассеяния частиц ^3He на больших углах.

На рис. 1а приведена рентгенодифрактограмма урановой пленки на алюминиевой подложке из первой серии экспериментов; четко наблюдаются три рефлекса, соответствующие алюминиевой подложке. / Al кристаллизуется в гранецентрированной кубической решетке/. Рефлекс от урановой пленки в области брэгговских углов $\theta = 14^\circ - 17^\circ$ получается нечеткий, размытый. Анализировать его практически невозможно. В связи с этим пленки были подвергнуты термообработке в вакууме при температуре 620°C /ограничение, определяемое температурой плавления Al / в течение 200 мин. Рентгенодифрактограмма отожженного образца представлена на рис. 1б. Рефлекс от урана по-прежнему носит диффузионный характер, но в более узкой области углов $\theta = 14^\circ - 15^\circ$. Материал подложки перекристаллизовался, наблюдается выраженная текстурность в направлении /200/.

Фазовый анализ пленок первой серии осложняется еще и тем, что уран является полиморфным материалом: α -U кристаллизуется в ромбической решетке /с параметрами $a = 2,858 \text{ \AA}$; $b = 5,877 \text{ \AA}$; $c = 4,955 \text{ \AA}$ /. β -U - в тетрагональной / $a = 10,759 \text{ \AA}$; $c = 5,656 \text{ \AA}$;

γ -U в кубической объемноцентрированной решетке / $a = 3,542 \text{ \AA}$ /^{17/}.

Учитывая указанные факторы, а также принимая во внимание сильные геттерные свойства урана /^{18/}, приготовление второй серии образцов мы производили при давлении в камере $3 \cdot 10^{-6}$ Тор.

Рентгенодифрактограммы этих пленок урана на стеклянных подложках представлены на рис. 2а, б. Проведенный фазовый анализ показал, что пленки урана двухфазны. Главные рефлексы соответствуют кристаллизации урана в своей основной ромбической решетке α -U. Для первого рефлекса получено значение межплоскостного расстояния $d = 3,157 \text{ \AA}$, которое не соответствует ни одной из аллотропических модификаций чистого урана. Найдено, что это значение разрешено для фазы двуокиси урана UO_2 , кристаллизуется в кубической решетке структурного типа CaF_2 (K6)^{19/}. Количество образующейся в конденсате двуокиси урана зависит от скорости испарения и парциального давления кислорода в камере.

Возвращаясь к первой серии образцов /рис. 1, давление в камере $2 \cdot 10^{-5}$ Тор/, можно сказать, что полученные конденсаты возникают на основе UO_2 . Диффузионный характер рефлекса от урана обусловлен мелкозернистой, аморфной структурой. Размеры кристаллитов находятся в пределах $30 \div 70 \text{ \AA}$ /определены на сканирующем электронном микроскопе JSM-35 /.

Для исследования влияния технологических условий на химический состав мишеней полученные пленки облучались пучком частиц ^3He с энергией $E_0 = 3,0 \text{ МэВ}$. При этом снимался энергетический спектр упруго отраженных частиц на больших углах $\theta = 135^\circ$ с помощью кремниевых детекторов с поверхностным барьером. Энергетические спектры приведены на рис. 3. Пленки урана были нанесены на Be /спектр 3а, первая серия/ и Si /спектр 3б, вторая серия/ подложки. Каждому присутствующему в пленке элементу с атомной массой m_2 соответствует строго определенная энергия в спектре E_{cs} /при условии, что длина свободного пробега частицы гораздо больше толщины пленки/. Эта энергия определяется по формуле /^{20/}:

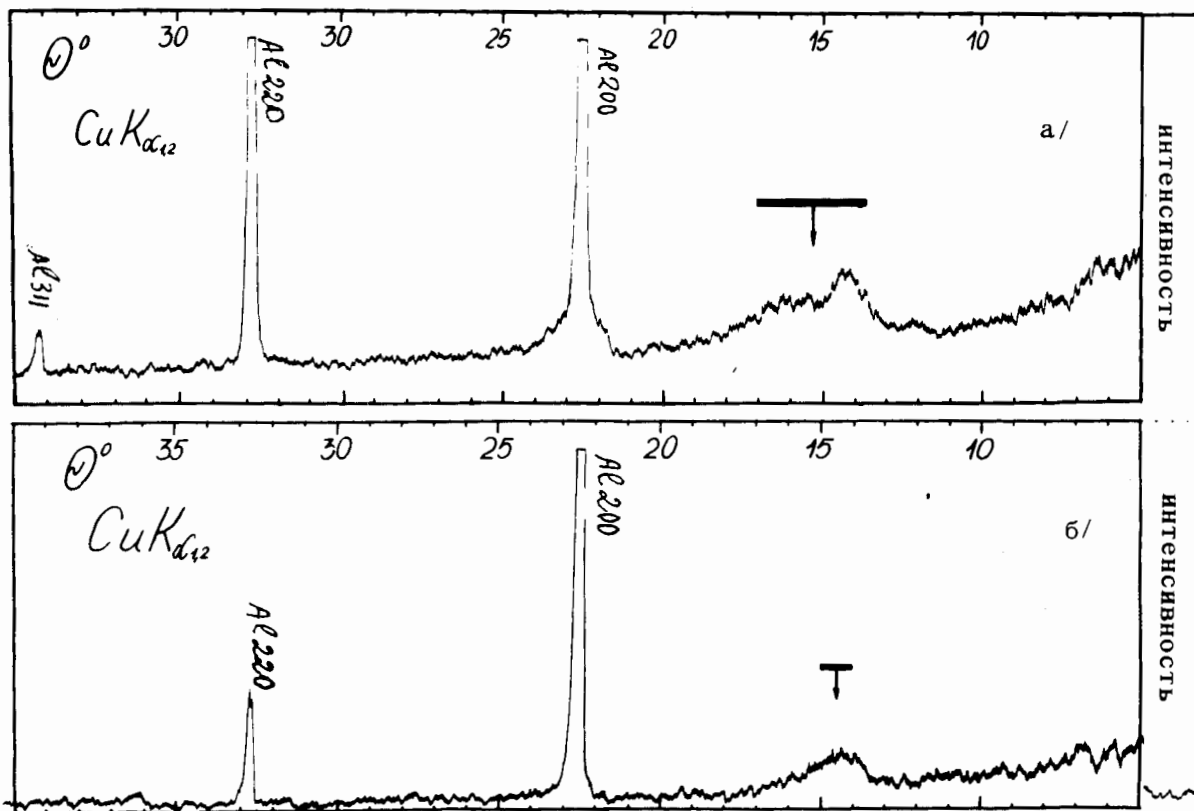


Рис. 1. Рентгенодифрактограмма пленки урана на алюминиевой подложке из первой серии экспериментов /а/, после отжига при 620°C /б/.

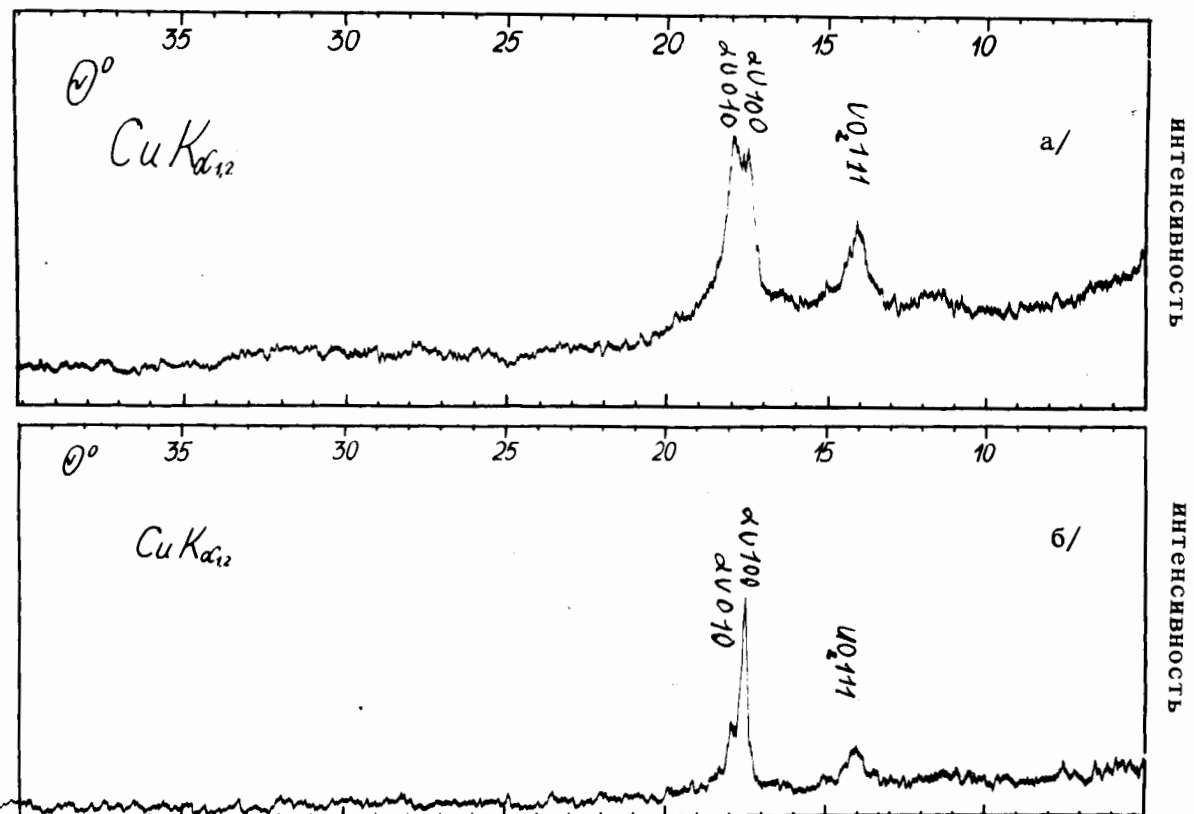


Рис. 2. Рентгенодифрактограммы пленок урана на стеклянных подложках из второй серии экспериментов.

$$E_{sc} = E_0 \left[\frac{m_1 \cos \theta + (m_2^2 - m_1^2 \sin^2 \theta)^{1/2}}{m_1 + m_2} \right]^2,$$

где: $m_1 = 3$ - атомная масса ${}^3\text{He}$; $\theta = 135^\circ$ - угол рассеяния в лабораторных координатах.

Следует отметить удобство анализа пленки, нанесенной на подложку из бериллия, так как при определении содержания в ней углерода, кислорода, азота - основных компонент остаточных газов в вакуумной камере - соответствующие значения E_{sc} больше и фон от подложки не мешает проведению точного анализа.

Зная заряд рассеянных частиц для отдельных элементов, сечение упругого рассеяния и телесный угол детектора, можно определить концентрацию этих элементов в пленке ^{/21/}.

Результаты такой обработки приведены в таблице, где представлены максимальные значения концентрации примесей в пленках.

Таблица

Максимальные значения содержания примесей в пленках урана для первой и второй серий экспериментов

Серия эксперим.	Элемент	C	N	O	Ti	Cu	Nb	Sn
вакуум	Содерж.							
I.	$2 \cdot 10^{-5}$ Торр в ат.%	0,5	0,3	12,1	0,1	0,015	0,1	1,4
вакуум	Содерж.							
II.	$3 \cdot 10^{-6}$ Торр в ат.%	0,08	0,06	2,6	-	0,01	0,1	-

Метод упругого рассеяния позволяет определять присутствие тяжелых элементов с атомной концентрацией до 10^{-9} ^{/22/}, являясь таким образом одним из самых

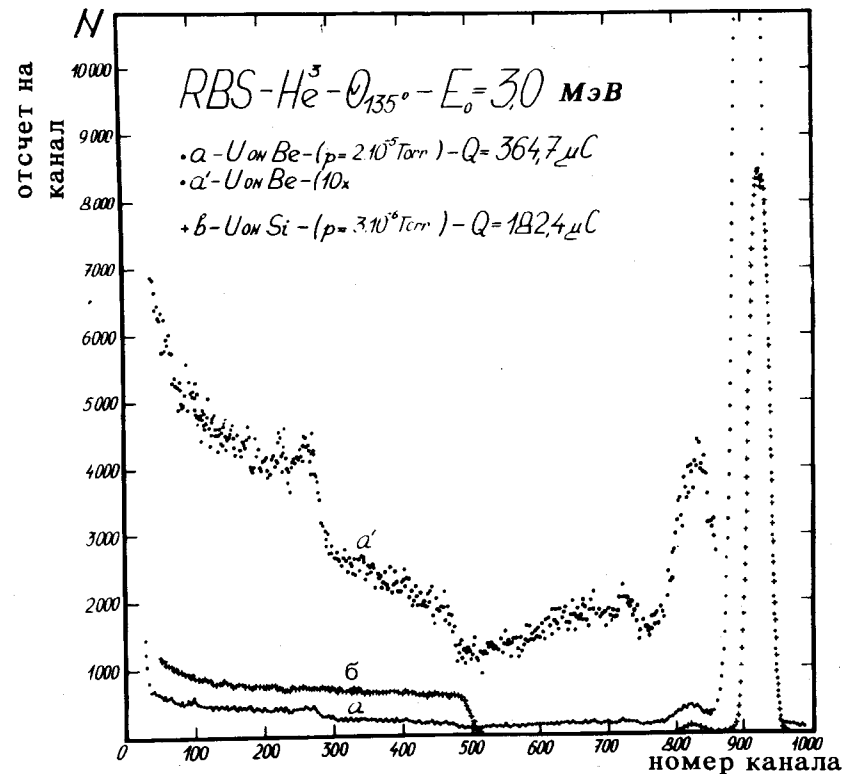


Рис. 3. Энергетический спектр рассеянных частиц ${}^3\text{He}$ от пленок урана на подложках из бериллия и кремния.

чувствительных методов химического анализа в настоящее время. Значение химического состава мишеней, содержащих тяжелые элементы, весьма существенно для однозначной интерпретации наблюдаемых в ядерных экспериментах явлений.

Анализируя химический состав пленок обеих серий, можно сказать следующее. Присутствие Ti и Sn в первой серии связано с загрязнением самих тиглей испарителя этими элементами и в дальнейшем было устранено. Медь вносится в пленки в результате реакции расплавленного урана с медным тиглем, а ниобий из проволоки термокатада ЭП испарителя, т.к. в процессе

работы под действием бомбардировки ионами урана тер-мокатод распыляется. Присутствие углерода, кислорода и азота непосредственно связано с вакуумными условиями в процессе испарения. При этом можно заметить по характеру спектра на рис. 3, что химическое воздействие урана на кислород происходит в течение всего времени испарения. Поэтому высокое содержание кислорода в пленках первой серии и образование новой нестехиометрической /с недостатком кислорода/ фазы на основе UO_2 является вполне закономерным.

Выводы

1. Получены урановые пленки для мишеней на подложках из различных материалов с хорошей адгезией и равномерностью по толщине.
2. Проведенные химический элементный и фазовый анализы показали сильную зависимость металлофизических свойств пленок урана от вакуумных условий в процессе приготовления.
3. В серии экспериментов при вакууме $2 \cdot 10^{-5}$ Тор образовались пленки с большим содержанием кислорода на основе новой нестехиометрической фазы UO_2 .
4. Улучшение вакуума до $3 \cdot 10^{-6}$ Тор способствует образованию пленок урана в основной фазе $\alpha-U$ с присутствием небольшого количества нестехиометрической фазы UO_2 .
5. Использование селективной откачки реактивных по отношению к урану газов может привести к получению пленок с управляемыми свойствами.
6. Присутствие тяжелых элементов в полученных пленках урана не обнаружено.

Литература

1. J. Oganessian, J. Penionzhkevich. JINR, E7-9187, Dubna, 1975.
2. K. Damodaran. Brit. J. Appl. Phys., 7, 322 /1956/.
3. S. Maxmann. Nucl. Instr. and Meth., 50, 53 /1967/.

4. E. Bruninx, G. Rudstam. Nucl. Instr. and Meth., 13, 131 /1961/.
5. D. Carswell, J. Milsted. J. Nucl. Energy, 4, 51 /1957/.
6. K. Glover, P. Borell. J. Nucl. Energy, 1, 214 /1955/.
7. W. Parker, H. Bildstein, N. Getoff. Nucl. Instr. and Meth., 24, 55 /1964/.
8. S. Prakash et al. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 22, 128 /1971/.
9. W. Parker, R. Falk. Nucl. Instr. and Meth., 16, 355 /1962/.
10. N. Getoff, H. Bildstein. Nucl. Instr. and Meth., 36, 173 /1965/.
11. W. Sedlacek. Nucl. Instr. and Meth., 99, 429 /1972/.
12. D. Aumann, G. Mullen. Nucl. Instr. and Meth., 115, 75 /1974/.
13. M. Ramaniak et al. Int. J. Appl. Radiat. Isotopes, 26, 648 /1975/.
14. Н. Балалыкин и др. ОИЯИ, Р8-6863, Дубна, 1972.
15. Н. Балалыкин, Ю. Муратов, Н. Рубин. ОИЯИ, Р8-6855, Дубна, 1972.
16. Н. Балалыкин и др. ОИЯИ, 9-9538, Дубна, 1976.
17. М. Филянд, Е. Семенова. Свойства редких элементов. Изд. Металлургия, М., 1964.
18. S. Dushman. Sci. Found. Vac. Tech., N.Y., L., 1962.
19. Л. Муркин. Справ. по рентг.анал., ГИФМЛ, М., 1961.
20. J. Ziegler. Thin Solid Films, 19, 189 /1973/.
21. J. Ziegler. Thin Solid Films, 19, 291 /1973/.
22. R. Jolly, H. White. Nucl. Instr. and Meth., 97, 299 /1971/.

Рукопись поступила в издательский отдел
13 мая 1976 года.