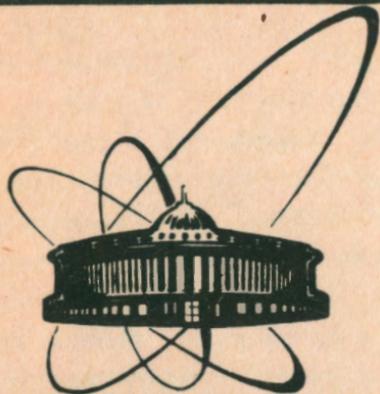


У1-56



сообщения
Объединенного
Института
Ядерных
Исследований
Дубна

P9-91-56

Ли Ен Ир, А.Ф.Новгородов

ПРИГОТОВЛЕНИЕ ТОНКИХ ИСТОЧНИКОВ
РАДИОАКТИВНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ
МЕТОДОМ ВАКУУМНОГО НАПЫЛЕНИЯ
Лантаноиды

1991

ВВЕДЕНИЕ

Из всех методов получения тонких радиоактивных источников заряженных частиц для целей прецизионной ядерной спектроскопии наиболее часто и успешно используется вакуумное напыление^{/1,2/}. Энергетическое разрешение лучших приборов для исследования конверсионных электронов при использовании приготовленных таким методом радиоактивных источников составляет десятки эВ. Этого, однако, недостаточно для систематического изучения низкоэнергетических конверсионных и оже-электронов, проведение которого является необходимым фундаментом для успешных экспериментов по определению массы антинейтрино на электростатическом спектрометре ESA-50^{/3/}. При этом энергетическое разрешение должно составлять уже единицы эВ и быть по величине близким или меньшим, чем естественная ширина изучаемых линий. Требуется разработка метода приготовления радиоактивных источников толщиной в десятки наногрмм на квадратный сантиметр, то есть равной 1-2 монослоям. Естественно, что исходный радиоактивный материал должен обладать высокой удельной активностью ($> 10^{14}$ Бк/г), а метод, по возможности, исключать попадание на подложку инертного вещества.

В течение ряда лет нами использовался усовершенствованный метод вакуумного напыления, отличающийся тем, что исходный радиоактивный материал электролитически наносился на испаритель, который непосредственно перед напылением радиоактивного препарата на подложку обезгаживался при максимальной возможной температуре. С использованием полученных этим методом источников на основе ^{51}Cr , ^{54}Mn , ^{55}Fe и ^{57}Co было достигнуто разрешение в несколько эВ в области энергий конверсионных и оже-электронов, равных 4-7 кэВ^{/4-6/}. Что касается основных операций предложенного метода, то если электролитическое осаждение ультрамикрочастиц большинства элементов, в том числе щелочноземельных^{/7/} и редкозе-

мельных /8-10/, не проблематично, то высокотемпературной десорбции следовых количеств элементов с поверхности тугоплавких металлов посвящено ограниченное количество работ, результаты которых противоречивы /11-14/.

Следует отметить, что надежные данные по высокотемпературной десорбции имеют первостепенное значение для разработки методов быстрых химических разделений очень короткоживущих радионуклидов, которые реализуются /15/ или планируются к реализации /16/ на ISOL-установках (Isotope Separator on-line). Учитывая постоянный и повышенный интерес ядерной спектроскопии к деформированным ядрам в области редкоземельных элементов, мы в первую очередь провели систематическое изучение высокотемпературной десорбции следовых количеств всех редкоземельных элементов с поверхности тантала - наиболее удобного по механическим и физико-химическим свойствам материала испарителя.

Результаты работы могут быть использованы не только для решения поставленной задачи приготовления тонких источников конверсионных и оже-электронов, но, возможно, и для реализации вакуумного термохроматографического разделения редкоземельных элементов /17/.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В работе использовались радиоактивные изотопы редкоземельных элементов, образующиеся при облучении тантала протонами с энергией 650 МэВ на фазотроне ОИЯИ. Выделение из мишени и разделение ультрамикроколичеств [10^{14} ат.] лантаноидов проводилось по методике, постоянно используемой в Лаборатории ядерных проблем /18/. Испарителем служила предварительно отожженная при 1500°C танталовая фольга (10x50 мм) толщиной 100 мкм с углублением для помещения 1-2 капель электролита (раствор α -гидрооксизобутирата аммония) /10/, содержащего радиоактивные изотопы изучаемого редкоземельного элемента. Анодом служила платиновая проволока, время электролиза составляло 5 минут и сила тока была равна 30 мА, что обеспечивало 60-80-процентное осаждение лантаноидов на танта-

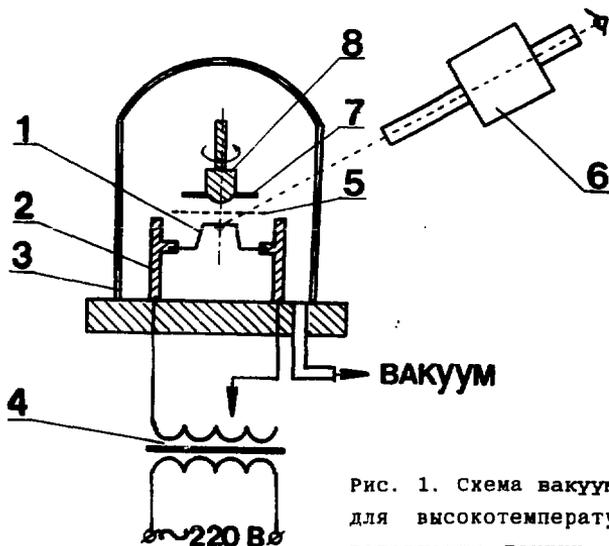


Рис. 1. Схема вакуумной камеры для высокотемпературного приготовления тонких источников радиоактивного излучения.

1 - танталовый испаритель; 2 - токовод; 3 - стеклянный колпак; 4 - автотрансформатор; 5 - экран; 6 - микропирометр; 7 - коллиматор; 8 - подложка-источник.

ловый катод. Тантал промывался под током водой и ацетоном, а затем высушивался под ИК-лампой. Исходная (перед испарением) активность (A_0) измерялась на гамма-спектрометре с Ge(Li)-детектором (40 см^3 , разрешение 1,5-2,5 кэВ в области энергий 100-1500 кэВ). Спектры обрабатывались на персональном компьютере "Правец-16" с использованием программы "SAMAR".

Высокотемпературная десорбция проводилась на вакуумном универсальном poste (ВУП-4), схема вакуумной камеры которого показана на рис. 1. Танталовый испаритель (1) укреплялся на тоководах (2), камера закрывалась стеклянным колпаком (3) и откачивалась до вакуума 10^{-6} Тор. Нагрев осуществлялся подачей регулируемого с помощью автотрансформатора (4) напряжения. Температура измерялась с погрешностью 10°C микропирометром (6), который калибровался по температурам

плавления серебра (962°C), золота (1064°C), меди (1083°C) и никеля (1455°C). Истинная температура $T(^{\circ}\text{C})$ связывалась с измеренной ($T_{\text{изм.}}$) соотношением:

$$T = 2,866 \cdot T_{\text{изм.}}^{0,857}$$

Время нагревания составляло 180 с, причем время достижения заданной температуры составляло менее 10 с, как и время резкого снижения температуры при снятии напряжения нагрева. После охлаждения испарителя и извлечения его из ВУП-4 измерялась оставшаяся на нем активность (A_t) с помощью полупроводникового гамма-спектрометра.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 2-5 представлены зависимости оставшейся на танталовом испарителе доли (%) активности лантаноидов от температуры нагрева продолжительностью 180 с. Эти данные использовались нами для определения теплот десорбции следовых количеств редкоземельных элементов с поверхности тантала. Уравнение Френкеля^{/19/} дает связь среднего времени жизни τ (с) адсорбированного атома на поверхности, температура которой равна T (К), с теплотой десорбции Q (Дж/моль):

$$\tau = \tau_0 \cdot \exp(Q/RT), \quad (1)$$

где $R = 8,3144$ Дж/моль К, а τ_0 - период колебаний адсорбированного атома, равный^{/20/}:

$$\tau_0 = h/kT, \quad (2)$$

где h - постоянная Планка, равная $6,626 \cdot 10^{-34}$ Дж·с, и k - постоянная Больцмана, равная $1,381 \cdot 10^{-23}$ Дж/к.

В свою очередь, среднее время жизни адсорбированного атома τ (с) связано (для реакций первого порядка) с измеренными в наших экспериментах величинами следующим соотношением:

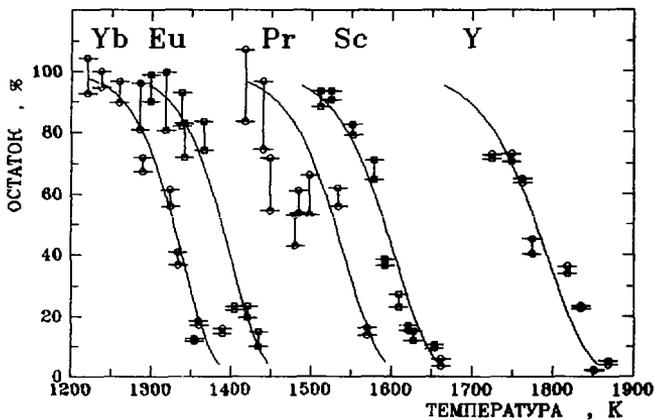


Рис. 2. Температурная зависимость доли следовых количеств Yb, Eu, Pr, Sc и Y, оставшейся на танталовом испарителе после его нагревания в течение 180 с.

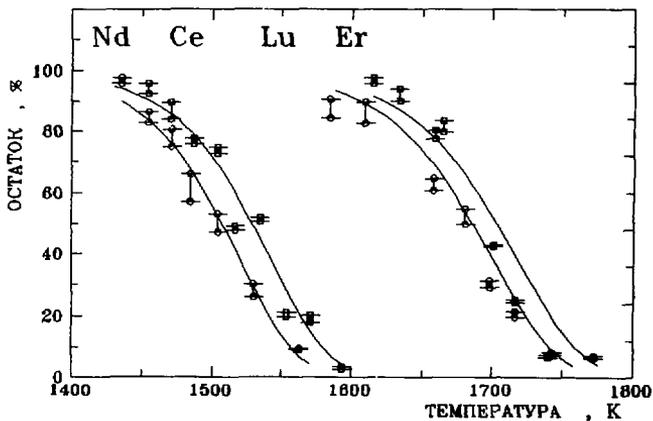


Рис. 3. Температурная зависимость доли следовых количеств Nd, Ce, Lu и Er, оставшейся на танталовом испарителе после его нагревания в течение 180 с.

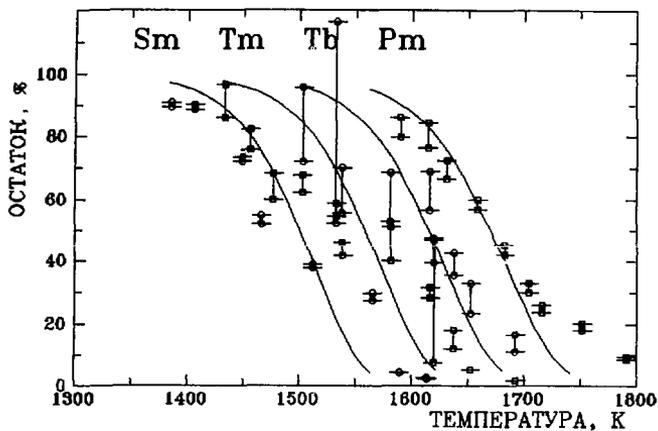


Рис. 4. Температурная зависимость доли следовых количеств Sm, Tm, Tb и Pm, оставшейся на танталовом испарителе после его нагревания в течение 180 с.

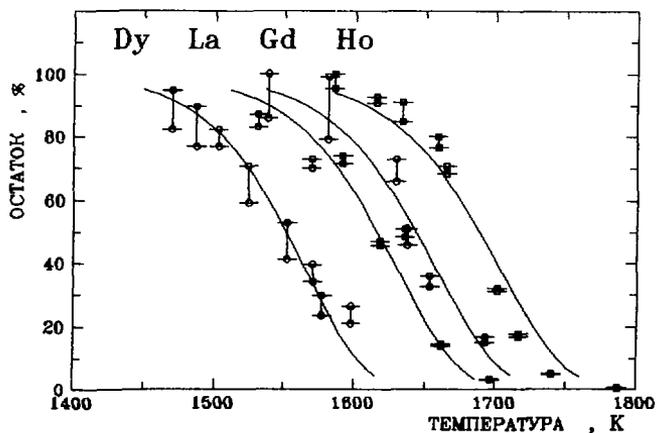


Рис. 5. Температурная зависимость доли следовых количеств Dy, La, Gd и Ho, оставшейся на танталовом испарителе после его нагревания в течение 180 с.

Таблица

Экспериментальные значения теплот десорбции следовых количеств лантаноидов (Q), полученные в настоящей работе, и значения энтальпий адсорбции (ΔH_a), предсказанные в работе /21/.

Радионуклид	Q , кДж/моль	ΔH_a , кДж/моль
^{46}Sc	$485,5 \pm 4,9$	- 544,7
^{88}Y	$544,3 \pm 5,9$	- 614,7
^{132}La	$493,2 \pm 6,5$	- 586,4
^{144}Ce	$465,9 \pm 3,5$	- 571,8
^{138m}Pr	$466,1 \pm 14,6$	- 518,8
^{140}Nd	$459,1 \pm 2,5$	- 517,6
^{143}Pm	$510,1 \pm 5,8$	- 504,7
^{153}Sm	$456,9 \pm 12,9$	- 382,8
^{155}Eu	$421,8 \pm 3,9$	- 359,9
^{146}Gd	$501,8 \pm 5,4$	- 609,3
^{155}Tb	$492,8 \pm 10,0$	- 585,7
^{159}Dy	$472,8 \pm 3,5$	- 486,1
^{160}Ho	$515,9 \pm 5,7$	- 502,2
^{160}Er	$520,5 \pm 7,9$	- 528,5
^{168}Tm	$475,1 \pm 11,8$	- 425,2
^{169}Yb	$403,0 \pm 4,6$	- 324,1
^{172}Lu	$515,1 \pm 6,5$	- 632,5

$$A_t = A_0 \cdot \exp(-t/\tau), \quad (3)$$

где t - время нагревания испарителя.

Для решения системы уравнений (1), (2) и (3) были составлены программы "edso" и "eds" на языке Турбо-Паскаль, с помощью которых по методу наименьших квадратов (с учетом ошибок всех измеряемых величин) рассчитаны теплоты десорбции следовых количеств лантаноидов с поверхности поликристалли-

ческого тантала. Эти данные представлены в таблице, в которой помещены также значения теплот адсорбции, полученные Б. Айхлером с сотрудниками по полуэмпирическим формулам ^{/21/}. Наблюдаемое удовлетворительное согласие не снимает основного вопроса, который возникает у экспериментатора при работе в условиях невысокого вакуума (10^{-6} Тор), а именно: в какой химической форме атом лантаноида покидает поверхность тантала - в виде нейтрального атома или монооксида ^{/22/}.

Хотя в технике получения относительно толстых (десятки и сотни $\text{мкг}/\text{см}^2$) металлических слоев лантаноидов и бария используется восстановление их оксидов тугоплавкими металлами ^{/23-25/}, химическая форма следовых количеств десорбирующихся частиц в условиях, когда 1 квадратный сантиметр поверхности танталового испарителя испытывает ежесекундно $2 \cdot 10^{14}$ соударений молекул кислорода, остается неясной. Вопрос этот важен и для определения точных энергий низкоэнергетических конверсионных и оже-электронов, так как в настоящее время работами М. Фишера с сотрудниками ^{/26/} тщательно установлены химические сдвиги энергий М-конверсионных электронов ЕЗ-перехода в ядре ⁹⁹Tс с энергией 2,17 кэВ, которые составляют около 1 эВ на единицу валентности. Мы планируем в дальнейшем изучить этот эффект в области лантаноидов, причем в первую очередь с помощью лазерной спектromетрии будет решаться вопрос о химической форме микроколичеств десорбирующихся с поверхности тантала редкоземельных элементов.

Результаты проведенного в настоящей работе исследования позволили усовершенствовать метод получения тонких источников низкоэнергетических конверсионных и оже-электронов, возникающих при распаде радионуклидов редкоземельной области. Полная схема этого метода кратко может быть представлена следующими операциями:

а) химическая очистка и концентрирование (до нескольких капель) радиоактивного препарата с максимально доступной удельной активностью ($> 10^{14}$ Бк/г);

б) электрохимическое осаждение радиоактивного препарата из 1-2 капель подходящего раствора на предварительно

обезгаженный при высокой температуре танталовый испаритель, его промывку водой и ацетоном;

в) обезгаживание танталового испарителя (1) (см. рис.1) в вакууме при температуре, при которой основная часть радиоактивности еще остается на нем; загрязнения, испаряющиеся при этом, принимаются на экран (5), который после окончания данной операции сдвигается в сторону;

г) быстрое вакуумное напыление радиоактивного препарата через коллиматор (7) на тщательно очищенную поверхность относительно массивной вращающейся подложки (8), что должно, по нашему мнению, уменьшить диффузию напыляемого вещества в подложку за счет радиационного нагрева.

Данный метод использовался нами для приготовления радиоактивных источников на основе $^{155}\text{Eu}/^{27}\text{F}$, $^{160}\text{Er}/^{28}\text{F}$ и ^{169}Yb , с использованием которых на электростатическом спектрометре ESA-50 получено энергетическое разрешение в несколько эВ.

В заключение авторы выражают благодарность Н.А.Лебедеву за предоставление радиоактивных препаратов лантаноидов и Р.Мисиаку за помощь при измерениях.

ЛИТЕРАТУРА

1. "Альфа-, бета- и гамма-спектроскопия". Под редак. К.Зигбана, М., Атомиздат, 1969, вып. 1, с. 380.
2. М.И.Бабенков, Б.В.Бобыкин и др. Препринт 13-83, ИЯФ АН КазССР, Алма-Ата, 1983.
3. Ch. Briançon, B.Legrand et al., NIM, 221 (1984), p. 547.
4. A.Kovalik, A.Inoyatov et al. J.Phys. B: Atom. Mol.Phys., 20 (1987), p. 3997.
5. A.Kovalik, M.Rysavy et al., Physica Scripta, 37(1988), p.871.
6. A.Kovalik, V.Brabec et al., J. of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 50(1990), p.89.
7. D.Roman., I.J.A.R.I., 36(1975), p. 677.
8. А.Ф.Новгородов, В.Л.Кочетков и др. Радиохимия, 6(1964), с. 73.
9. G.-J.Beyer, E.Herrmann. JINR, E12-7744, Dubna, 1974.

10. Х.Брухерзайфер, К.А.Гаврилов и др., ОИЯИ, Р6-80-717, Дубна, 1980.
11. В.С.Фоменко, И.А.Подчерняева "Эмиссионные и адсорбционные свойства веществ и материалов". М.: Атомиздат, 1975.
12. Б.К.Медведев. ФТТ, 16 (1974), с. 1903.
13. F.Rosch, B.Eichler, ZFK-606, Rossendorf, 1986.
14. R.Kirchner. GSI 87-1, 1987, p. 259.
15. B.Grapengiesser, G.Rudstam. Radiochim.Acta, 20(1973), p.85.
16. А.Ф.Новгородов, Г.-Ю.Байер и др., Радиохимия, 23(1981), с.149.
17. Г.-Ю.Байер, А.Ф.Новгородов, В.А.Халкин. Радиохимия, 20 (1978), с. 589.
18. До Ким Тунг, Н.А.Лебедев и др. Радиохимия, 26(1984), с. 210.
19. J.Frenkel, Z.Physik, 26(1924), p. 117.
20. Я.Де Бур. "Динамический характер адсорбции".М.,ИЛ, 1962,с.278
21. В.Eichler, S.Hubener, H.Rosbach. ZfK-561, Rossendorf, 1985.
22. Б.Л.Жуйков, Т.Реетц, И.Звара. ОИЯИ, 6-83-371, Дубна, 1983.
23. J.M.Heagney, J.S.Heagney. IEEE Trans. on Nucl.Sci., NS-30 (1983), p. 1563.
24. В.Е.Сторижко, Л.Г.Лишенко и др. Тезисы докл. XXXIV Совещания по ядерн.спектроскопии и структуре атомного ядра. Л.,Наука, 1984, с. 398.
25. В.А.Степаненко, А.И.Левон, Г.Н.Козерацкая. Там же, с. 396.
26. M.Fiser, V.Vrabec et al. Appl.Radiat.Isot., 39(1988), p.943.
27. В.М.Горожанкин, А.Ковалик и др. Тезисы докладов XL Совещания "Ядерная спектроскопия и структура атомного ядра". Л., Наука, 1990, с. 97 и 98.
28. V.M.Gorozhankin, A.Kovalik et al. J.Phys. G.: Nucl. Part. Phys., 16(1990), p.99.

Рукопись поступила в издательский отдел

28 января 1991 года.