

ЭКОНОМИЧНЫЙ И БЫСТРЫЙ СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ЧИСТЫХ ПЛЕНОК ИЗ ТУГОПЛАВКИХ ИЗОТОПОВ ДЛЯ ЯДЕРНО-ФИЗИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

А. А. Дадыкин, Н. И. Заика, В. П. Токарев

Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев

Свободные пленки (мишени) из тугоплавких изотопов бора, циркония, молибдена текстурированных структур приготовлены методом бестигельной зонной плавки и исследованы. Полученные пленки высокой чистоты и площадью около 2 см^2 , толщиной $\leq 1 \text{ мг / см}^2$, однородностью около 1 % обеспечивают возможность изучения ядерных реакций с требуемой прецизионной точностью измерения.

1. Введение

При исследовании различных ядерных реакций с заданной точностью измерений необходимы достаточно чистые, однородные и свободные мишени толщиной $\leq 1 \text{ мг / см}^2$ и площадью несколько квадратных сантиметров. Приготовление таких мишеней методом магнетронного распыления [1 - 2] связано с большим расходом дорогостоящих изотопных материалов, поставляемых в виде кристаллических или аморфных порошков, из которых необходимо изготавливать прессованием (или ядерной покраской), согласно требованиям конструкции магнетрона промышленной вакуумной установки ВУП-5М, материнские мишени большой площади ($\leq 12 \text{ см}^2$). При этом получаемые пленки часто не соответствуют требованиям к их чистоте из-за наличия в них загрязняющих примесных газов. В связи с этим мишени традиционно изготавливают термовакuumным распылением порошков изотопов из тиглей, нагреваемых электронным лучом, либо из нагреваемых током проводимости лодочек [3]. Большинство напыляемых материалов, используемых для изготовления мишеней, имеют малое давление насыщенных паров даже при температуре их плавления, из-за чего времена напыления пленок заданной толщины составляют десятки часов. При этом, особенно в случае хороших сорбентов типа титана, молибдена, циркония, вольфрама, в результате получают слоистые пленки карбидированных окислов даже при давлении остаточных газов $p \sim 10^{-8}$ торр.

Очевидно, для получения чистых пленок за приемлемое время $\geq 1 \text{ ч}$ испарение этих материалов необходимо проводить при температурах, превышающих их температуру плавления (особенно для циркония). При этом вследствие заметной взаимной растворимости материалов испаряемого вещества и тигля возникает опасность загрязнения конденсата веществом тигля.

В случае легкоплавких веществ часто удается 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.

Целью настоящих исследований была разработка простого экономичного способа приготовления за относительно короткое время $\geq 1 \text{ ч}$ чистых свободных пленок из тугоплавких материалов с параметрами, которые обеспечивают изучение ядерных реакций с высокой точностью измерений.

2. Приготовление образцов и методы их исследования

В работе использованы изотопы бора, циркония и молибдена в виде порошков, или таблеток и стержней. При прессовании таблеток и стержней в качестве биндера использовался раствор нитроцеллюлозы в грушевой кислоте. При прогреве образцов в вакууме при температуре 450 °С биндер улетучивался практически бесследно, что подтверждено специальными опытами с катодлюминофорами типа ZnS, особенно чувствительных к загрязнению углеродом [4].

Нагрев образцов осуществлялся электронной бомбардировкой в испарителе заводского изготовления на установке ВУП-5М. Испарение различных веществ проводилось также из тиглей, корзинок, лодочек, а в случае использования прессованных стержней из специальных держателей с малой площадью соприкосновения с образцом. Температура образцов измерялась оптическим микропирометром [5]. Визуальные наблюдения и контроль в процессе нагрева образцов проводились с помощью зрительной трубы большой светосилы. Толщина напыляемых пленок предварительно оценивалась из геометрии опытов, а в случае полупроводниковых веществ типа бора (В), определялась по числу интерференционных полос на пленке. Окончательно вес получаемых пленок измерялся микровзвешиванием их на аналитических весах с точностью 5 %. Морфология пленок изучалась в растровом электронном микроскопе, а чистота оценивалась измерением их удельных сопротивлений двухзондовым методом с точностью <1 % [6].

3. Результаты и их интерпретация

Изучение влияния взаимодействия материала тигля с расплавленным веществом на процесс испарения проведено на примерах систем Zr - W и В - С. При расплавлении циркония в вольфрамовой корзине, укрепленной в верхней части электронно-лучевого испарителя (ЭЛИ), образец принимает форму капли, как схематически показано на рис. 1.

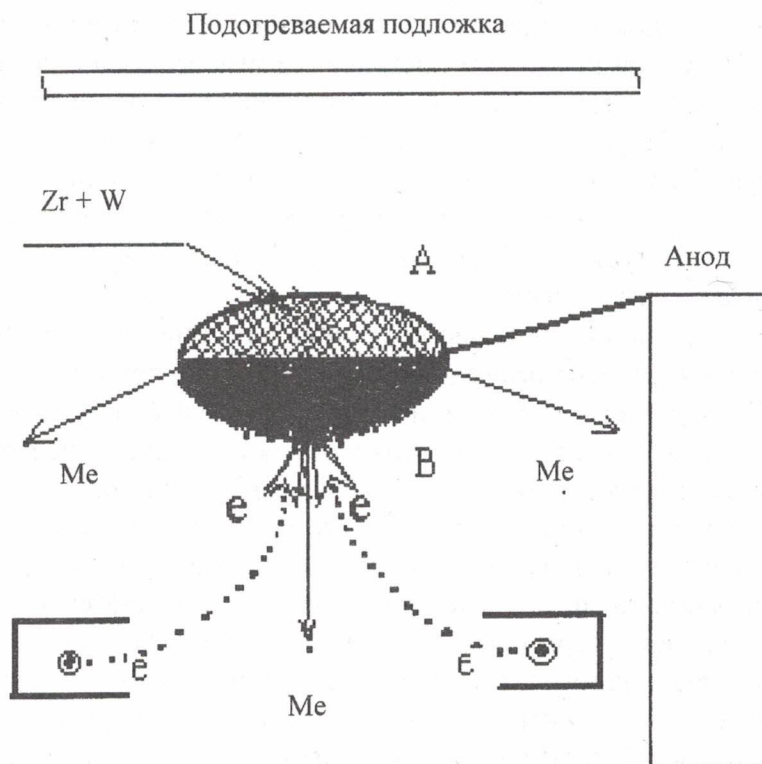


Рис. 1. Схема эксперимента при расположении вольфрамовой корзины в верхней части ЭЛИ.

Верхняя часть капли, как это отчетливо видно при рассмотрении расплавленного образца в зрительную светосильную трубу, покрывается практически неиспаряемой тугоплавкой пленкой. Вся навеска может быть испарена при температуре около 2500 °С примерно за 10 мин. При этом практически весь материал испаряется в сторону, противоположную от подложки, - вниз. При более высоких температурах наблюдается взрывообразное испарение материала в виде капель во все стороны. После полного испарения всей навески вольфрамовая корзина покрывается налетом тугоплавкого окисного остатка, который трудноудалим вплоть до температуры плавления вольфрама. Более заметного испарения в сторону подложки можно добиться помещением корзины с испаряемым веществом в нижнюю часть ЭЛИ, однако испарение в этом случае происходит преимущественно в виде кластеров размерами до сотен микрон в результате разрушения верхней тугоплавкой пленки электронным лучом.

Наблюдаемые здесь процессы легко объяснить, исходя из анализа температурной диаграммы состояния системы Zr - W. Эта диаграмма относится к случаю ограниченной растворимости вольфрама в цирконии в жидком и твердом состояниях. В этом случае в интервале температур выше температуры плавления эвтектики и циркония ≥ 2127 °С (именно этот интервал представляет практический интерес при получении больших скоростей испарения) расплав расслаивается на два отдельных несмачивающихся сплава А и В. При этом сплав А, обогащенный цирконием, как более легкое соединение всплывает на поверхность капли, а нижняя часть капли обогащается вольфрамом.

Такой же эффект возникает и в случае системы Mo - W.

Очевидно, что пленки, полученные таким способом, особенно при близких значениях эффективных сечений ядерных реакций на исследуемом веществе и его примесях, совершенно непригодны для изучения этих реакций из-за наличия больших загрязняющих примесей материала тигля. 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 соответствующие пары материалов вещества и тигля, пригодные для изготовления пленок необходимой чистоты.

В системе В - С при некотором превышении температуры плавления систематически наблюдается образование карбида бора B_4C . Это соединение при нагреве не расплавляется в однородную жидкую фазу, а разлагается на жидкую фазу определенного состава и на твердую нелетучую фазу с более высокой температурой плавления. В связи с этим пленка бора толщиной около 100 мкг/см² при испарении из графитового тигля при температуре более низкой, чем температура образования эвтектики (<1500 °С), может быть получена только за несколько десятков часов.

Исходя из изложенного, с целью получения более чистых пленок такой же толщины за приемлемое время ≥ 1 ч, использован метод бестигельной зонной плавки [7], реализуемый с помощью ЭЛИ. Для этого порошки изотопов прессовали в стержни соответствующих размеров и в весовых количествах, достаточных для получения пленок заданной толщины. Для обеспечения однородности толщины получаемых пленок около 1 % образцы испаряемых материалов располагались на расстоянии 6 см от подложки по сфере. Стержни закреплялись в специальном вольфрамовом держателе, как схематически показано на рис. 2. В этом методе практически исключался контакт тигля с испаряемым веществом, а значит, исключалась возможность загрязняющего влияния материала тигля и эвтектики. Тепловой баланс на стержне подбирался таким, чтобы плавилась только его торцевая часть. По мере опускания расплавленной зоны в процессе распыления фокус электронного луча, регулирующий тепловой баланс плавления, корректировался напряжением и током катода. Такой способ нагрева обеспечивает достаточный перегрев расплавленного образца без образования эвтектики, что приводит к существенному росту давления насыщенных паров и, следовательно, к большей скорости испарения вещества. При этом удается распылить свыше

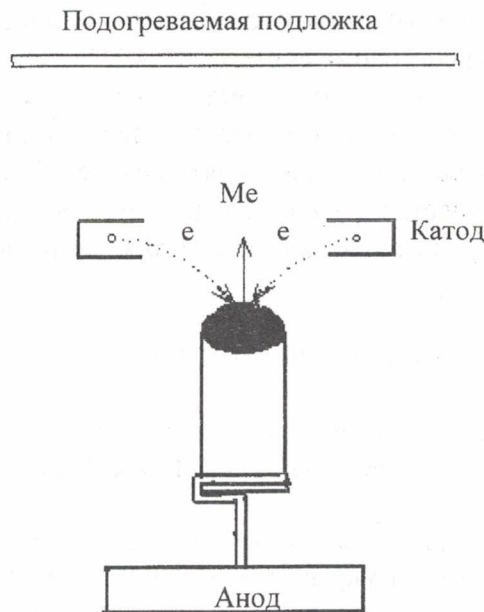


Рис. 2. Схема распылительной ячейки с вольфрамовым держателем.

90 % исследуемого материала без загрязнения его веществом держателя или эвтектики.

Более того, сегрегационные явления, сопровождающие процесс расплава [8], приводят к оттеснению загрязняющих примесей к фронту кристаллизации расплава, что приводит к существенной очистке испаряемого образца от посторонних примесей. Такой прием широко используется в полупроводниковой металлургии при получении уникально чистых материалов.

С использованием этого способа были изготовлены свободные пленки из бора, циркония и молибдена площадью около 2 см^2 и толщиной в несколько сотен мкг/см^2 за относительно короткое время $\geq 1 \text{ ч}$.

Расход материала, толщина пленок и время напыления приведены в таблице.

Характеристики изготавливаемых мишеней

Изотоп	Толщина пленки, мкг/см^2	Расчетный расход материала, мг	Фактический расход, мг	Время напыления, мин
Mo	100 ± 5	22	25	120
Zr	300 ± 15	65	72	90
B	200 ± 10	43	50	60

Измерения удельных сопротивлений полученных пленок двухзондовым методом соответствовали табличным данным для чистых исходных материалов (высокообогащенных изотопов) с примесями, не превышающими $\leq 1 \%$. Таким образом, использование метода бестигельной зонной плавки позволяет получить чистые и свободные пленки из тугоплавких материалов с параметрами, пригодными для изучений различных ядерных реакций.

Заключение

Разработан простой и экономичный метод получения чистых свободных пленок из тугоплавких материалов типа бора, циркония, молибдена, имеющих малое давление насыщенных паров при температуре их плавления. Приготовлены и исследованы изотопные образцы в виде таблеток и стержней, испаряемых из различных тиглей и специальных держателей с малой площадью соприкосновения. Изучено влияние взаимодействия

материала тигля с расплавленным веществом образца на процесс испарения с помощью анализа температурных диаграмм состояния систем Zr - W и В - С.

Показано, что использование метода бестигельной зонной плавки приводит к большим значениям давления насыщенных паров и, следовательно, к большей скорости испарения вещества. Это дает возможность распылять свыше 90 % исследуемого материала без заметного загрязнения его веществом держателя и получать за приемлемое время чистые и однородные мишени из тугоплавких изотопов для проведения ядерно-физических исследований.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Kay E. // Advan. Electron. Electron. Phys. - 1962. - Vol. 17. - P. 245.
2. Francombe M.H. Basic Problems Thin Film Physics. Vandenhoeck and Ruprecht. Goettingen, 1966. - P. 52.
3. Заика Н.И., Токарев В.П., Оношко Н.Ф. и др. Исследование характеристик ядерных и перезарядных мишеней: Отчет ИЯИ АН Украины, 1993 - 1995 гг. - С. 1 - 23.
4. Иванов А.П., Предко К.Г. Оптика люминесцентного экрана. - Минск: Наука и техника, 1984.
5. Лансберг Г.С. Оптика. - М.: Наука. - 1976. - С. 701 - 706.
6. Курносов А.И., Юдин В.В. Технология производства полупроводниковых приборов // Судостроение. - 1965. - С. 169.
7. Брук В.А., Гаршенин В.В., Курносов А.И. Производство полупроводниковых приборов. - М, 1968. - С. 31.
8. Романенко В.Н. Получение однородных полупроводниковых кристаллов. - М.: Металлургия, 1966.

ЕКОНОМІЧНИЙ І ШВИДКИЙ СПОСІБ ОДЕРЖАННЯ ЧИСТИХ ПЛІВОК З ТУГОПЛАВКИХ ІЗОТОПІВ ДЛЯ ЯДЕРНО-ФІЗИЧНИХ ДОСЛІДЖЕНЬ

О. А. Дадикін, М. І. Заїка, В. П. Токаре́в

Вільні плівки (мішені) із тугоплавких ізоотопів бору, цирконію, молібдену текстурованих структур виготовлено методом безтигельної зонної плавки й досліджено. Отримані плівки високої чистоти і площею біля 2 см², товщиною ≤ 1 мг / см², однорідністю біля 1 % забезпечують можливість вивчення ядерних реакцій з необхідною прецизійною точністю вимірювання.

ECONOMIC AND PROMPT EXPEDIENT OF DERIVING PURE FILMS FROM HIGH-MELTING ISOTOPES FOR NUCLEAR-PHYSICAL INVESTIGATIONS

A. A. Dadykin, N. I. Zaika, V. P. Tokarev

Free films (targets) from high-melting boron, zirconium, molybdenum isotopes of textured structures are prepared and explored by the method of uncrucible zone melting. 2 sm² films of ≤1 mg / sm² thickness with homogeneity about 1 % and high cleanness ensure the opportunity of studying the nuclear reactions with a required precision of measured accuracy.

Поступила в редакцію 04.07.01,
после доработки – 06.02.02.