

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
Ордена Ленина Сибирское отделение
ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ им. Г.И. Будкера

Б.Ф. Баянов, В.И. Ободников,
С.Ю. Таскаев, Е.Г. Тишковский

ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ОСТАТОЧНОГО ГАЗА
НА ЛИТИЕВЫЙ СЛОЙ
НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩЕЙ МИШЕНИ

ИЯФ 2007-2

Новосибирск
2007

Изучение влияния остаточного газа на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени

Б.Ф. Баянов, С.Ю. Таскаев,

Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера
630090, Новосибирск, Россия

В.И. Ободников, Е.Г. Тишковский

Институт физики полупроводников
630090, Новосибирск, Россия

В настоящее время в Институте ядерной физики СО РАН сооружается ускорительный источник эпитепловых нейтронов, рассматриваемый как возможное решение проблемы проведения нейтронозахватной терапии рака в клинике. Одним из основных элементов установки является литиевая мишень, генерирующая нейтроны в результате реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ при сбросе не нее протонного пучка.

В ранее проведенном эксперименте на ускорителе в Бирмингеме при сбросе протонного пучка на литиевую мишень наблюдалось уменьшение выхода нейтронов на 10% на единицу тока за 3 часа. Данная работа посвящена выяснению возможной причины уменьшения выхода нейтронов вследствие взаимодействия лития с остаточным газом. На масс-спектрометре вторичных ионов измерено глубинное распределение состава литиевых слоев, экспонированных в различных вакуумных условиях, и проведены визуальные наблюдения поведения литиевого слоя в вакууме и в атмосфере.

© *Институт ядерной физики им. Г.И.Будкера СО РАН*

Введение

В настоящее время в Институте ядерной физики сооружается новаторский источник эпитепловых нейтронов на основе компактного ускорителя для нейтронозахватной терапии рака [0]. Генерация нейтронов осуществляется в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ при сбросе протонного пучка на литиевую мишень. Ранее, в эксперименте на ускорителе в Бирмингеме [2] было обнаружено уменьшение выхода нейтронов на 10% через 3 часа работы (рис. 1) при сбросе 10 мА 2,8 МэВ протонного пучка на литиевую мишень толщиной 1 мм и диаметром 40 мм. По этому поводу авторы работы писали следующее: “В процессе работы наблюдалось изменение цвета мишени, поверхность покрывалась пятнами, слегка белыми и черными областями. Мы не имели возможности ближе осмотреть мишень из-за ее активации. Заметим, что вакуум был на уровне $6 \cdot 10^{-7}$ торр и что ускоритель оснащен безмасляными насосами. ... Являются ли эти пятна следствием изменения мишени или других факторов – так и не было выяснено”.

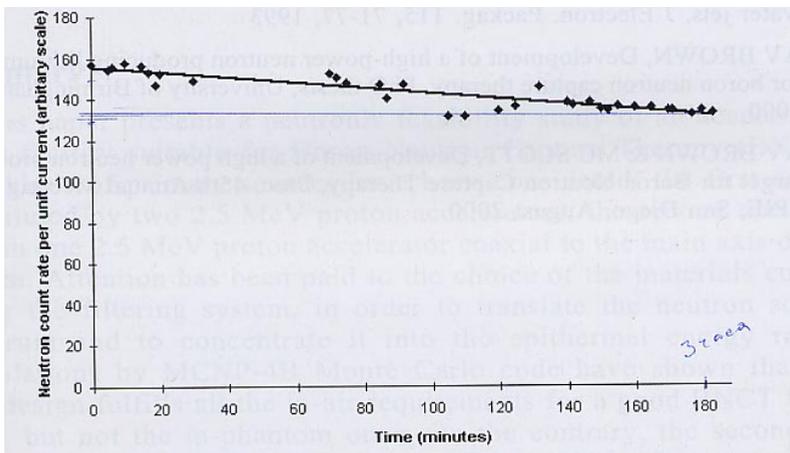


Рис. 1. Временная зависимость выхода нейтронов на единицу тока протонов.

Возможными причинами регистрируемого уменьшения выхода нейтронов представляются следующие:

1. Изменение состава литиевого слоя в результате взаимодействия с остаточным газом. Так, выход нейтронов из оксида лития в 2 раза меньше, чем из чистого лития.
2. Появление толстых пленок масла или других соединений на литиевом слое.
3. Неконтролируемое изменение протонного пучка, падающего на мишень.
4. Существенное возрастание давления паров лития в протонопроводе.

Целью данной работы является выяснение возможности первой из перечисленных причин (влияния остаточного газа на изменение состава литиевого слоя) привести к зарегистрированному уменьшению выхода нейтронов. Для достижения этой цели были использованы два метода: i) исследование распределения соединений лития по глубине при экспозиции литиевого слоя в различных вакуумных условиях и ii) визуальное наблюдение поведения литиевого слоя в вакууме и в атмосфере.

1. Экспериментальные установки

1.1. Стенд напыления

На рис. 2 показан экспериментальный стенд, на котором осуществлялось напыление литиевого слоя на подложку мишени и проводились визуальные наблюдения за поведением литиевого слоя в вакууме. Вакуум 10^{-5} торр обеспечивался турбомолекулярным насосом со скоростью откачки 150 л/с.



Рис. 2. Экспериментальный стенд изучения напыления лития на мишень (слева) и узел мишени с системой напыления.

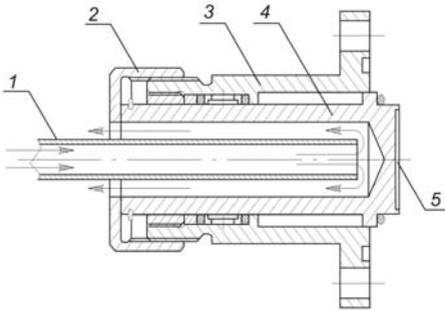


Рис. 3. Узел транспортировки образца: 1 – сопло, 2 – накидная гайка, 3 – корпус, 4 – поршень, 5 – место для помещения образца.

Для транспортировки образца с напыленным литиевым слоем в здание Института физики полупроводников, где проводились измерения профиля плотности состава слоя, был разработан и изготовлен узел транспортировки образца (рис. 3).

Узел транспортировки образца присоединялся к охлаждаемой водой мишени, в которой по центру было сделано отверстие для напыления образца. В непосредственной близости от образца был расположен специальный нагреватель для запыления образца защитным тонким слоем алюминия. Нагреватель был изготовлен из 5 вольфрамовых проволок диаметром 0,3 мм, свитых в жгут в процессе их нагревания постоянным током через скользящие контакты [3]. Этот жгут вольфрамовых проволок при нагреве был свит в спираль и затем смонтирован на мишени через керамические изоляторы.

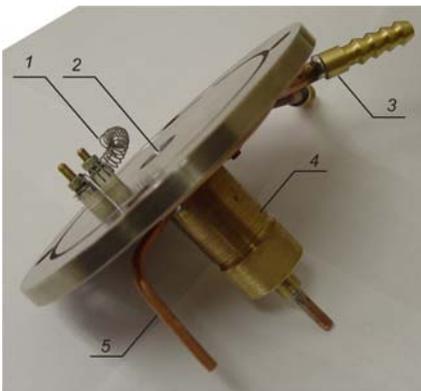


Рис. 4. Мишень с нагревателем и узлом транспортировки: 1 – нагреватель для напыления алюминия, 2 – место для образца, 3 – водяное охлаждение, 4 – узел транспортировки образца, 5 – трубка для поддува аргона.

1.2 Масс-спектрометр

Измерение состава литиевого слоя проводилось в Институте физики полупроводников СО РАН на масс-спектрометре вторичных ионов квадрупольного типа Riber MIQ-256 (CAMECA-RIBER, Франция), показанного на рис. 5. Принцип действия масс-спектрометра основан на распылении исследуемой поверхности первичным ионным пучком и регистрации вторичных ионов, сепарированных по отношению массы к заряду. В проведенных экспериментах пучок первичных ионов O_2 с энергией 10 кэВ бомбардирует поверхность под углом 45° . Для выхода на нужную глубину распыление проводилось пучком с током 1,2 μA , сканируемым по растру $250 \times 250 \mu m$. Анализ выхода вторичных ионов проводился при токе пучка 0,05 μA со сканированием по растру $100 \times 100 \mu m$. Анализатор квадрупольного типа расположен под углом 90° к направлению травящего пучка.

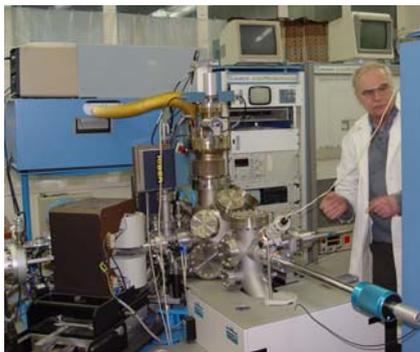


Рис. 5. Масс-спектрометр вторичных ионов квадрупольного типа Riber MIQ-256.



2. Полученные результаты и обсуждение

2.1. Визуальное наблюдение

Хорошо известно [4], что при температуре ниже $200^\circ C$ литий в основном взаимодействует с азотом, формируя нитрид лития Li_3N черного цвета (оксид лития Li_2O формируется при температуре выше $200^\circ C$, гидрид лития – выше $400^\circ C$, и также при высокой температуре – карбид лития Li_2C_2). Торможение протонов в литии с первоначальных 2,8 МэВ до порога генерации нейтронов 1,882 МэВ происходит на толщине $137 \mu m$ [3]. Поскольку выход нейтронов из нитрида лития в 1,66 раз меньше, чем из

чистого лития [3], то для уменьшения выхода нейтронов на 10% требуется, например, чтобы 20 $\mu\text{м}$ лития заменились нитридом лития. Слой такой толщины заведомо выглядит черным, поэтому визуальное наблюдение за изменением цвета позволит оценить скорость образования нитрида лития при взаимодействии лития с остаточным газом.

В вакууме 2×10^{-5} торр литий слегка чернел только после нескольких часов, и грубо можно сказать, что в течение 3 ч 0,1 $\mu\text{м}$ лития заменяется нитридом лития. И хотя в бирмингемском эксперименте температура мишени была определенно выше (предположительно 120 $^{\circ}\text{C}$), но кажется совершенно невероятным, чтобы скорость взаимодействия лития с газом возросла более чем в 10^4 раз, с тем чтобы в вакууме в 30 раз лучше сформировался 20 $\mu\text{м}$ слой нитрида лития за 3 ч.

При вскрытии вакуумной камеры на атмосферу, поверхность литиевого слоя немедленно изменяла цвет с серебристо-белого на практически черный (рис. 6,а). Но даже в воздухе только тонкий слой лития превращался в нитрид лития, поскольку легким царапанием под этим слоем можно было обнаружить чистый литий (рис. 6,б). Через трое суток этот слой становился серым (вероятно, оксидом лития, что возможно в результате замещения азота кислородом), расширялся и легко отделялся от подложки (рис. 6,с).

Т.о., визуальные наблюдения демонстрируют, что в бирмингемском эксперименте взаимодействие лития с остаточным газом с образованием нитрида не может являться причиной уменьшения выхода нейтронов на 10% за 3 часа.



Рис. 6. Литиевая мишень через 10 мин нахождения в воздухе (а, б) и через трое суток (с).

2.2. Измерение профилей

Были подготовлены и исследованы 3 образца, различающиеся временем нахождения в вакууме 2×10^{-5} торр: первый образец покрывался защитным слоем алюминия сразу после напыления литиевого слоя, второй через 30 мин и третий через 1 ч. Поскольку полученные результаты не отличаются, то ниже приводятся результаты, полученные на втором образце.

Подготовка образца. Подложкой образца является танталовая пластина размером $4 \text{ мм} \times 8 \text{ мм}$, толщиной 1 мм, очищенная в ультразвуковой ванне. Подложка под давлением через тонкий слой индия устанавливалась на место для образца узла транспортировки (5 на рис. 3). Затем $0,68 \text{ см}^3$ металлического лития помещали в систему напыления лития, а 4 алюминиевых пластинки размером $7 \text{ мм} \times 4 \text{ мм} \times 0,05 \text{ мм}$ навешивали на специальный нагреватель для напыления алюминия. После этого вакуумную камеру откачивали до 2×10^{-5} торр.

Система напыления лития представляет собой шибер (рис. 3), на подвижную тарелку которого помещены литиевый контейнер и нагреватель. Для напыления подвижная тарелка шибера с контейнером и нагревателем вдвигается в протонопровод и, смещаясь затем в направлении к мишени на несколько миллиметров, упирается в теплоизолированный сильфон, что ограничивает объем напыления. Включение нагревателя позволяет нагреть литий в контейнере и практически весь перенести на охлаждаемую мишень диаметром 10 см. Так, однородный перенос $0,68 \text{ см}^3$ лития на диск диаметром 10 см приводил бы к толщине слоя 87 $\mu\text{м}$. Измерения же толщины литиевого слоя на свидетелях, находящихся в хорошем тепловом контакте с мишенью, по измерению проводимости дистиллированной воды, в которой растворялся этот слой, дают значения 80 $\mu\text{м}$ (методика описана в работе [6]). После напыления и выключения нагревателя, подвижная тарелка шибера убиралась, предоставляя возможность убедиться в серебристо-белом цвете мишени, сфотографировать мишень (рис. 7) и проводить визуальные наблюдения. После 30-минутной экспозиции в вакууме литиевый слой запылался алюминиевым толщиной порядка 1 $\mu\text{м}$.

После остановки турбомолекулярного насоса в вакуумную камеру напускался аргон под избыточным давлением, поршень узла транспортировки вдвигался внутрь, узел снимался при поддуве аргона через трубку (5 на рис. 4) и закрывался диском. Продолжающийся поддув аргона позволил предотвратить взаимодействие воздуха с образцом вплоть до его доставки в Институт физики полупроводников. И только в непосредственной близости от масс-спектрометра образец на короткое время его извлечения из узла транспортировки и установки на специальную платформу контактировал с воздухом. И хотя литий был запылен тонким слоем алюминия, за это время образец потемнел.

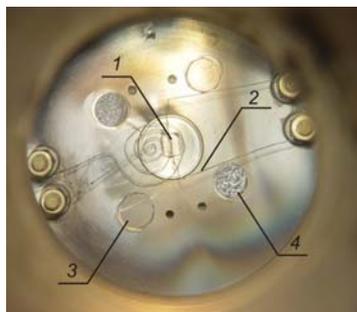
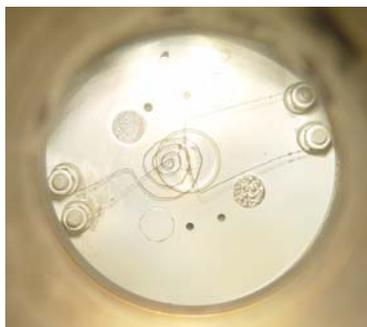


Рис. 7. Мишень после напыления лития (слева) и последующего запыления алюминием (справа): 1 –образец, 2 – нагреватель для напыления алюминия, 3 – свидетели, установленные на мишень через индий, 4 – свидетели, положенные на мишень.

Платформа помещалась в шлюзовую камеру установки MIQ-256, в которой за 10 – 15 мин достигался вакуум 10^{-3} торр. Далее платформа перемещалась в загрузочную камеру с вакуумом 10^{-8} торр, которая в течение 10 часов прокачивалась до вакуума 10^{-10} торр. Затем платформа с образцом перемещалась в камеру анализа с рабочим вакуумом 10^{-11} торр. Выход вторичных отрицательных ионов был измерен при распылении образца пучком ионов O_2^+ .

Схема эксперимента показана на рис. 8, режим работы приведен в табл. 1.



Рис. 8. Схема эксперимента.

Табл. 1. Режим эксперимента.

Режим	Ток пучка, μA	Растр, μm	Длительность, мин	Глубина, μm
Измерение	0,05	100 × 100	6	0
Распыление	1,2	250 × 250	30	
Измерение	0,05	100 × 100	6	1,5
Распыление	1,2	250 × 250	30	
Измерение	0,05	100 × 100	6	3
Распыление	1,2	250 × 250	60	
Измерение	0,05	100 × 100	6	6
Распыление	1,2	250 × 250	30	
Измерение	0,05	100 × 100	6	7,5

Последний столбец таблицы требует комментария. Реально он показывает, до какой глубины распылится кремний при таком режиме распыления. Дело в том, что каких-либо данных о скорости распыления лития не удалось найти, вероятнее всего, из-за отсутствия исследований лития на масс-спектрометрах. Поскольку скорости распыления многих элементов отличаются не сильно, то мы полагаем, что и скорость распыления лития не отличается сильно от скорости распыления кремния. Более того, для выявления эффекта нам не требуется точное знание глубины, и в дальнейшем мы ее используем скорее как относительную величину.

Заметив еще раз, что нам не удалось найти данных об исследовании лития на масс-спектрометре, мы вынуждены признать, что и абсолютные измерения плотности элементов по выходу отрицательных ионов провести невозможно, или точнее, требуют огромного объема работ по калибровке. К счастью, для достижения цели нам оказалось достаточно измерить выход отрицательных ионов. Графики выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы к заряду на разных глубинах представлены на рис. 9-13, графики выхода вторичных отрицательных ионов от глубины для характерных отношений массы к заряду представлены на рис. 14-17.

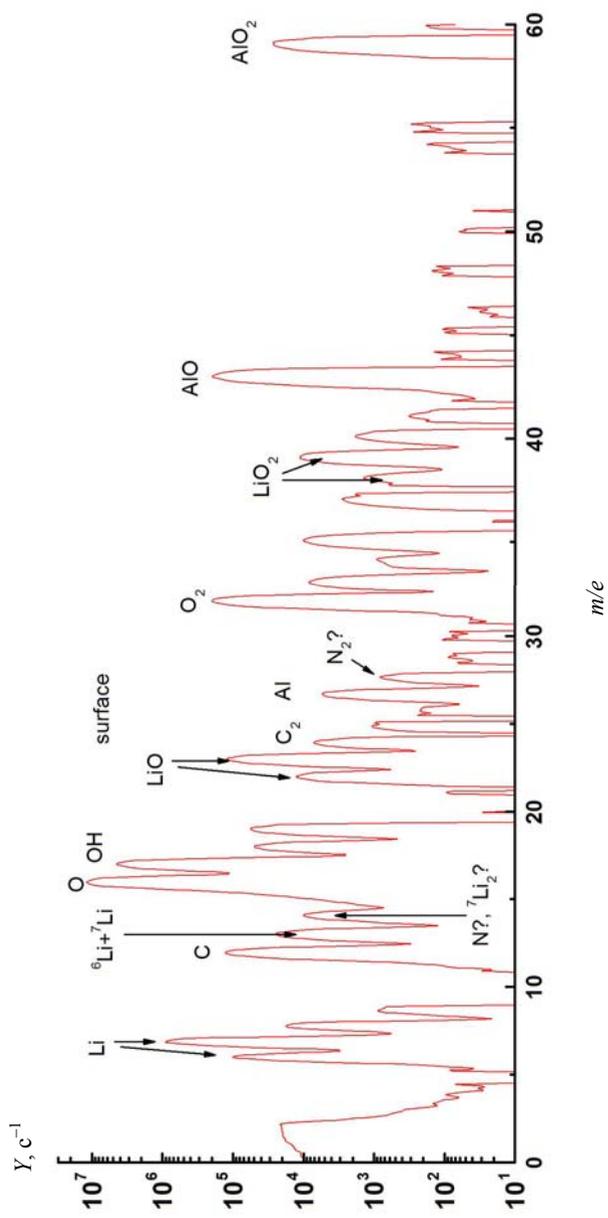


Рис. 9. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы к заряду на поверхности образца.

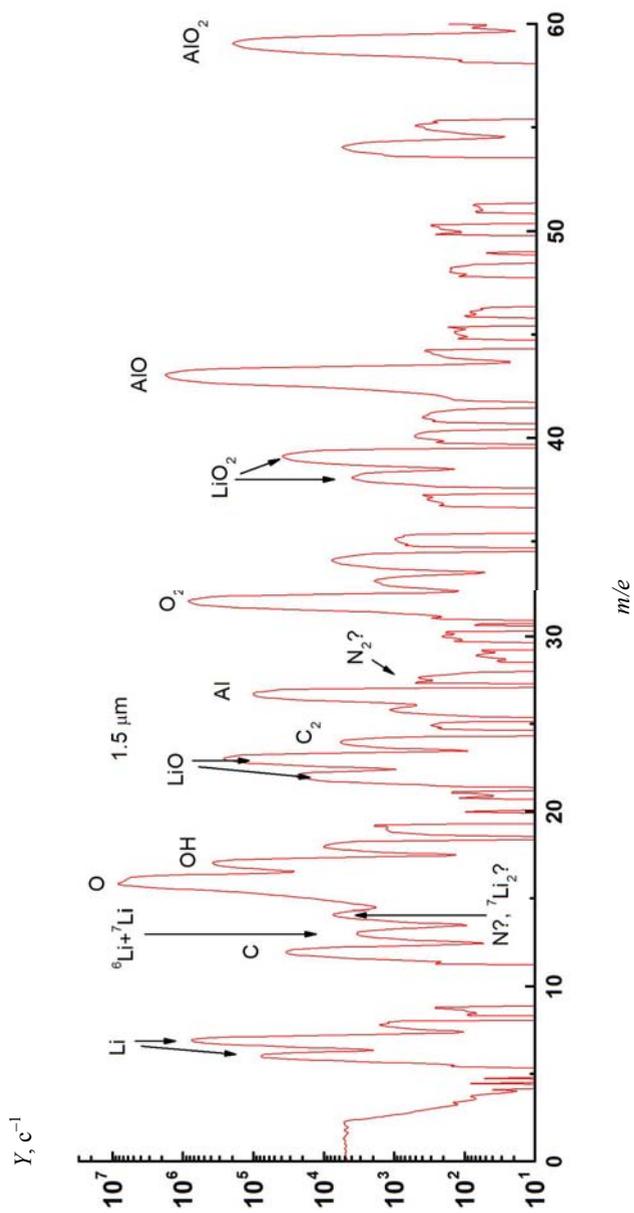


Рис. 10. Зависимость выхода отрицательных ионов от отношения массы к заряду на глубине $1,5 \mu m$.

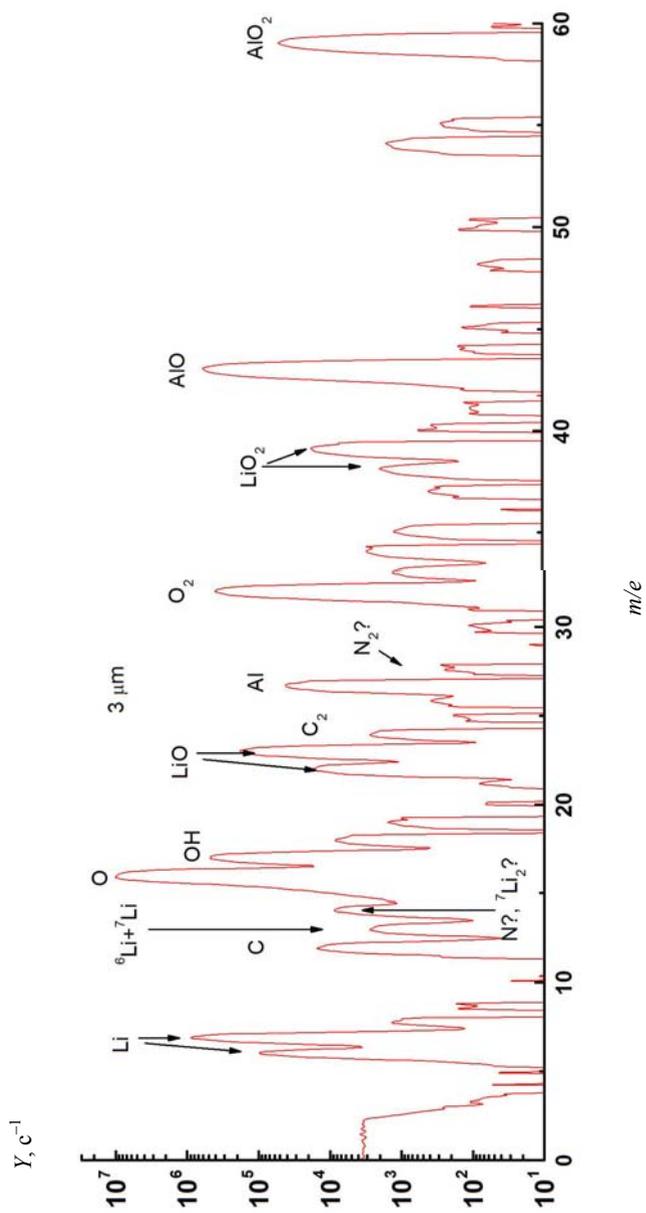


Рис. 11. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы к заряду на глубине $3 \mu m$.

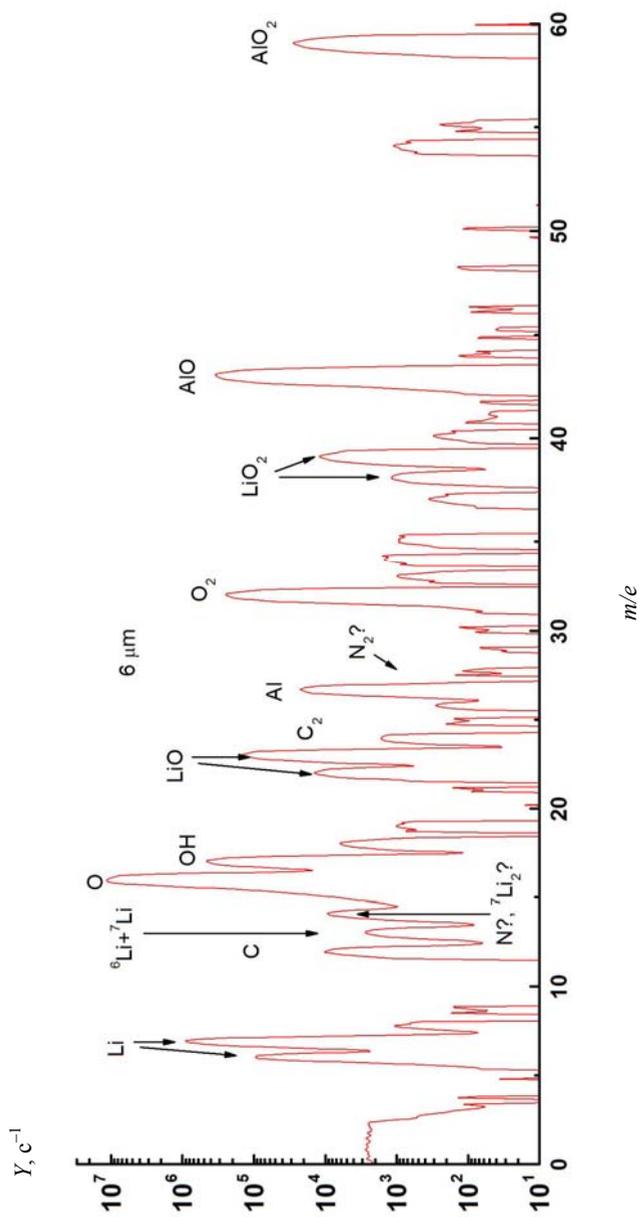


Рис. 12. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы к заряду на глубине 6 μm .

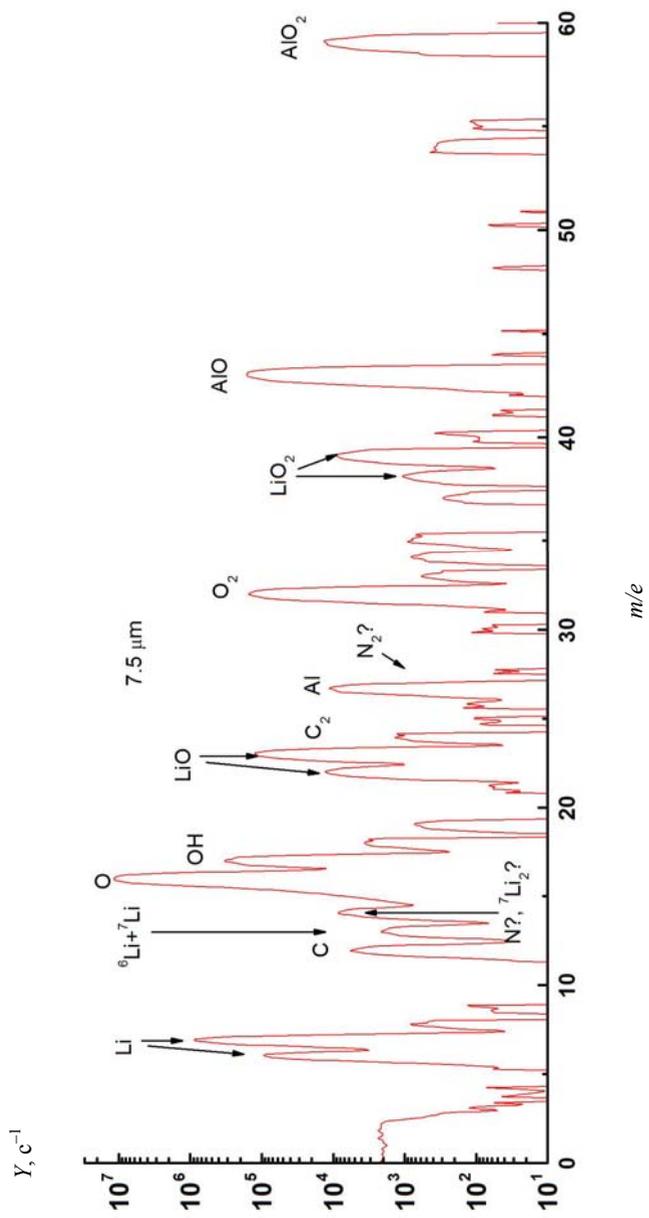


Рис. 13. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы к заряду на глубине $7,5 \mu m$.

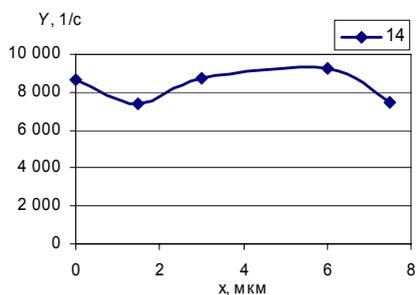
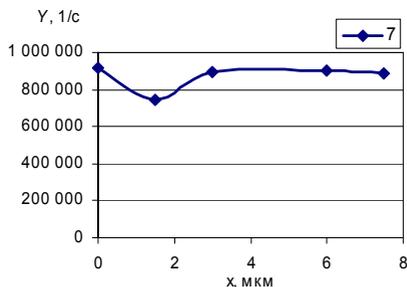
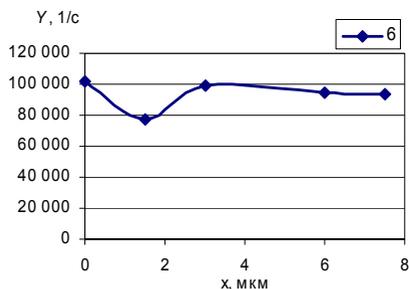


Рис. 14. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины для $m/e = 6, 7$ и 14 .

Сигналы с $m/e = 6$ и $m/e = 7$ на рис. 14 однозначно соответствуют двум изотопам лития ${}^6\text{Li}$ и ${}^7\text{Li}$ вследствие высокой интенсивности и их корреляции. Хорошо известно, что в природном литии концентрация изотопа ${}^7\text{Li}$ в среднем превышает концентрация изотопа ${}^6\text{Li}$ в 11 раз. На рис. 14 видно, что отношение регистрируемого сигнала с $m/e = 7$ к $m/e = 6$ примерно равно 9. Интенсивность и поведение сигнала с $m/e = 14$ указывает на его принадлежность к ${}^7\text{Li}_2$.

Из поведения кривых на рис. 14 видно, что литий присутствует везде, в том числе и на поверхности, несмотря на то, что литиевый слой специально запыляли алюминием. Регистрируемая большая концентрация лития на поверхности, вероятнее всего, связана с тем, что литий просачивается сквозь алюминиевый слой возможно даже в процессе запыления. Характерный провал в выходе отрицательных ионов на глубине 1,5 μm , очевидно, объясняется наличием защитного алюминиевого слоя, который однозначно идентифицируется сигналами с $m/e = 27$ (Al), 34 (AlLi), 43 (AlO) и 59 (AlO₂), представленными на рис. 15. Из рис. 15 видно, что толщина алюминиевого слоя порядка 1 μm , как и прогнозировалось при напылении.

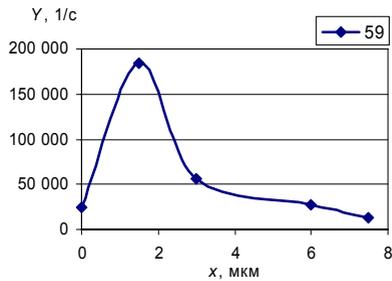
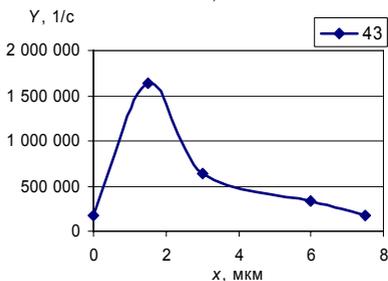
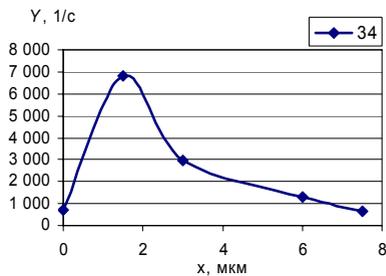
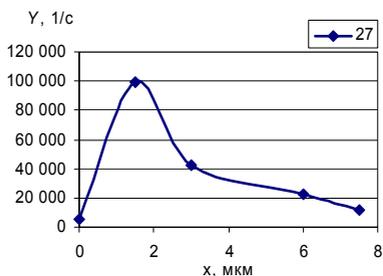


Рис. 15. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины для $m/e = 27, 34, 43$ и 59 .

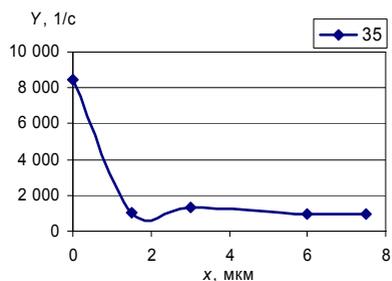
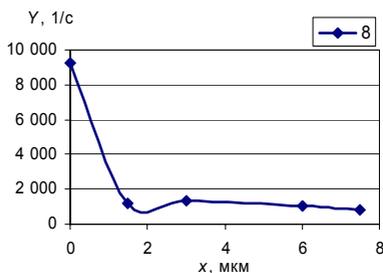


Рис. 16. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины для $m/e = 8$ и 35 .

Кривые на рис. 16, характеризуемые интенсивным сигналом на поверхности с проседанием на глубине 1,5 $\mu\text{м}$, соответствуют соединениям лития: гидриду лития LiH ($m/e = 8$) и нитриду Li_3N ($m/e = 35$). Вероятнее всего, гидрид и нитрид лития образуются на поверхности в тот момент, когда образец вынимали из контейнера и устанавливали в масс-спектрометр. В течение этих 5 мин нахождения образца в атмосферном воздухе и образуются соединения лития на поверхности, поскольку, как было выяснено ранее, литий просочился сквозь защитный алюминиевый слой. Вероятность такого процесса подтверждается также наблюдаемым потемнением образца в тот момент.

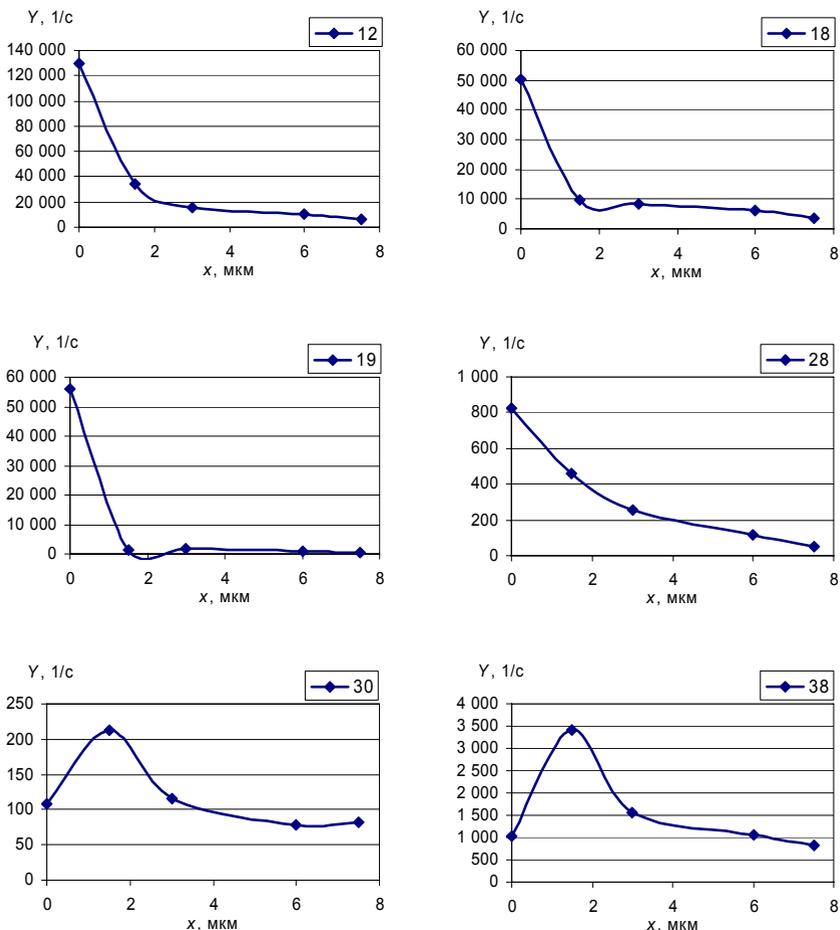


Рис. 17. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины для $m/e = 12, 18, 19, 28, 30$ и 38 .

Результат, представленный на рис. 16, является главным результатом работы. Во-первых, поведение профиля нитрида лития в глубине образца не отличается для всех трех образцов, которые находились в вакууме разное время. Во-вторых, сигнал нитрида лития на глубине 3 – 7,5 $\mu\text{м}$ за защитным литиевым слоем на порядок меньше сигнала на поверхности. Следовательно, за 30 мин нахождения образца в вакууме 2×10^{-5} торр не более 10% лития могло превратиться в нитрид лития, что косвенно подтверждается чуть заметным изменением цвета литиевого слоя. И

в-третьих, за 5 мин при давлении 750 торр только около 1 $\mu\text{м}$ лития превратилось в нитрид лития. Т.о., кажется маловероятным, чтобы в бирмингемском эксперименте за 3 ч в результате взаимодействия лития при температуре около 120 $^{\circ}\text{C}$ с остаточным газом при давлении 6×10^{-7} торр образовалось 20 $\mu\text{м}$ нитрида лития.

В заключение для полноты картины на рис. 17 представлены сигналы с $m/e = 12, 18, 19, 28, 30$ и 38. Видно, что углерод ($m/e = 12$) и вода ($m/e = 20$) присутствуют на поверхности. Сигналы с $m/e = 19$ и $m/e = 38$ возможно связаны со взаимодействием лития с углеродом.

Заключение

В эксперименте на ускорителе в Бирмингеме при сбросе протонного пучка на литиевую мишень наблюдалось уменьшение выхода нейтронов на 10% на единицу тока за 3 ч. Для выяснения причины уменьшения выхода нейтронов на масс-спектрометре вторичных ионов измерено глубинное распределение состава литиевых слоев, экспонированных в различных вакуумных условиях, и проведены визуальные наблюдения поведения литиевого слоя в вакууме и в атмосфере. Выяснено, что взаимодействие лития с остаточным газом не является причиной регистрируемого уменьшения выхода нейтронов и не будет определять время жизни мишени в планируемых экспериментах на сооружаемом в ИЯФ СО РАН пилотном варианте ускорительного источника эпитепловых нейтронов.

Литература

- [1] *B. Bayanov, et al.* Accelerator based neutron source for the neutron-capture and fast neutron therapy at hospital, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res., **A413** (1998) 397.
- [2] *A. Brown, K. Forsey, and M. Scott.* The design and testing high power lithium target for accelerator-based boron neutron capture therapy. Research and Development in Neutron Capture Therapy, Eds.: W. Sauerwein, R. Moss, and A. Wittig. Monduzzi Editore, 2002, p.277-282.
- [3] *L. Holland.* Vacuum deposition of thin films, 1956.
- [4] *H. Andersen* (Ed.). Hydrogen stopping powers and ranges in all elements. Pergamon Press Inc., 1977.
- [5] *Ю. И. Остроушко и др.* Литий, его химия и технология, М.: Атомиздат, 1960.
- [6] *Б.Ф. Баянов, В.П. Белов, Е.В. Журов, С.Ю. Таскаев.* Напыление литиевого слоя нейтроногенерирующей мишени, Препринт ИЯФ 2007-3, Новосибирск, 2007.

Б.Ф. Баянов, В.И. Ободников, С.Ю. Таскаев, Е.Г. Тишковский

**Изучение влияния остаточного газа
на литиевый слой нейтроногенерирующей мишени**

B. Bayanov, V. Obodnikov, S. Taskaev, E. Tishkovsky

**Study of the effect of residual vacuum
on the lithium layer of neutron producing target**

ИЯФ 2007-2

Ответственный за выпуск А.М. Кудрявцев

Работа поступила 16.01.2007 г.

Сдано в набор 17.01.2007 г.

Подписано в печать 18.01.2007

Формат 60x90 1/16 Объем 1.2 печ.л., 1.0 уч.-изд.л.

Тираж 125 экз. Бесплатно. Заказ № 2

Обработано на ИВМ РС и отпечатано

на ротапинтере "ИЯФ им. Г.И. Будкера" СО РАН
Новосибирск, 630090, пр. Академика Лаврентьева, 11