

МЕТОДЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТОЛЩИНЫ И ЭЛЕМЕНТАРНОГО СОСТАВА ТОНКИХ СЛОЕВ, ОБЛУЧАЕМЫХ ПУЧКОМ ИОНОВ, ПРИ ИЗМЕРЕНИИ СЕЧЕНИЙ ЯДЕРНЫХ РЕАКЦИЙ

М. И. Бикчурина^{a, б, 1}, И. П. Асанов^в, Т. А. Быков^{a, б}, Д. А. Касатов^{a, б},
Я. А. Колесников^{a, б}, А. Г. Николаев^г, Е. М. Окс^{г, д}, Г. М. Остреинов^{a, б},
С. С. Савинов^{a, б}, Е. О. Соколова^{a, б}, С. В. Трубина^{б, в}, А. А. Шуклина^{a, б},
Г. Ю. Юшков^г, С. Ю. Таскаев^{a, б, е}

^a Институт ядерной физики им. Г. И. Будкера СО РАН, Новосибирск, 630090, Россия

^б Новосибирский государственный университет, Новосибирск, 630090, Россия

^в Институт неорганической химии им. А. В. Николаева СО РАН, Новосибирск, 630090, Россия

^г Институт сильноточной электроники СО РАН, Томск, 634055, Россия

^д Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, Томск,
634050, Россия

^е Объединенный институт ядерных исследований, Дубна, 141980, Россия

В Институте ядерной физики СО РАН создан и функционирует ускорительный источник нейтронов VITA на базе ускорителя-тандема с вакуумной изоляцией. VITA включает в себя оригинальный tandemный электростатический ускоритель частиц (ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией) для получения моноэнергетического пучка протонов или дейtronов с энергией до 2,3 МэВ, током до 10 мА. Установка оснащена γ --, α - и нейтронными спектрометрами и дозиметрами. Ускоритель используют для развития бор-нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей, радиационного тестирования перспективных материалов и в последнее время для измерения сечения ядерных реакций. Достоверное определение линейной плотности атомных ядер, взаимодействующих с пучком заряженных частиц, и примесей, влияющих на скорость торможения заряженных частиц, критически важно при измерении сечения ядерных реакций. Сложность определения этих параметров может объяснять значительный разброс данных о сечении ядерных реакций, представляемых различными группами исследователей. В работе представлены результаты измерения сечений ряда ядерных реакций, и особое внимание уделено описанию используемых методов измерения толщины и элементного состава тонких исследуемых слоев, облучаемых пучком протонов или дейtronов. Обсуждается применимость этих методов и их точность, приводится сравнение полученных результатов, и обсуждаются предложения по развитию диагностического комплекса установки для проведения дальнейших измерений сечений ядерных реакций, данные о которых важны для многих приложений.

¹E-mail: M.I.Bikchurina@inp.nsk.su

The tandem electrostatic charged particle accelerator of the unique design, called the Vacuum Insulated Tandem Accelerator (VITA), was proposed, created, and is now in operation at Budker Institute of Nuclear Physics. The accelerator generates stable direct current proton or deuteron beams with the energy up to 2.3 MeV and current up to 10 mA. It is equipped with γ -, α -, and neutron spectrometers and dosimeters. The accelerator is used for the development of boron neutron capture therapy of malignant tumors, radiation testing of promising materials, and more recently for measuring cross-sections of nuclear reactions. The credible values of the cross-sections are important for many applications. For measuring the cross-sections of nuclear reactions, the reliable determination of the linear thickness of atomic nuclei, interacting with the charged particle beam, and impurities, affecting the charged particle braking rate, is crucial. The difficulty in determining these parameters may explain the considerable variation in the nuclear reactions cross-sections data provided by different groups of researchers. The study presents the results of the cross-sections measurements of a number of nuclear reactions and pays special attention to the description of the methods used to measure the thickness and elemental composition of thin investigated layers irradiated by a beam of protons or deuterons. The usability of these methods and their accuracy are discussed; the comparison of the results obtained is given. The proposals for the development of the diagnostic tools of the facility for further measurements of nuclear reactions cross-sections are discussed.

PACS: 13.60.Hb; 29.25.Dz

ВВЕДЕНИЕ

Измерение сечений ядерных реакций в настоящее время вызывает большой интерес для многих различных областей науки. Достоверность результатов обуславливается точностью параметров эксперимента. Основной вклад в погрешность результата, как правило, вносит процесс определения толщины используемой мишени. Предпочтительно не только как можно больше повысить точность, но и обеспечить применение нескольких независимых способов контроля толщины.

Измерения поперечных сечений реакций проводились на ускорительном источнике нейтронов VITA в Институте ядерной физики (Новосибирск, Россия) с помощью γ -, α - и нейtronного спектрометров.

Цель данной работы состоит в том, чтобы показать различные способы определения толщины исследуемого тонкого слоя на примере литиевой и борной мишеней при взаимодействии с протонным и дейtronным пучками.

1. СХЕМА УСТАНОВКИ

Исследование проводилось на ускорительном источнике нейтронов VITA в Институте ядерной физики (Новосибирск, Россия) [1, 2]. Схема экспериментальной установки показана на рис. 1. Ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией 1 используется для получения моноэнергетического пучка протонов или дейtronов с энергией от 0,1 до 2,3 МэВ (стабильность 0,1 %), током от 1 нА до 10 мА (стабильность 0,4 %). Ток пучка измеряется и контролируется неразрушающим трансформатором постоянного тока NPCT (Bergoz Instrumentation, Франция) 2. Пучок направляется на мишень 4 через 1-мм коллиматор 3.

2. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

2.1. Литиевая мишень. Разработанная литиевая мишень представляет собой тонкий слой чистого металлического лития, нанесенный термическим способом на тонкую медную подложку. Для напыления используют природный литий производства

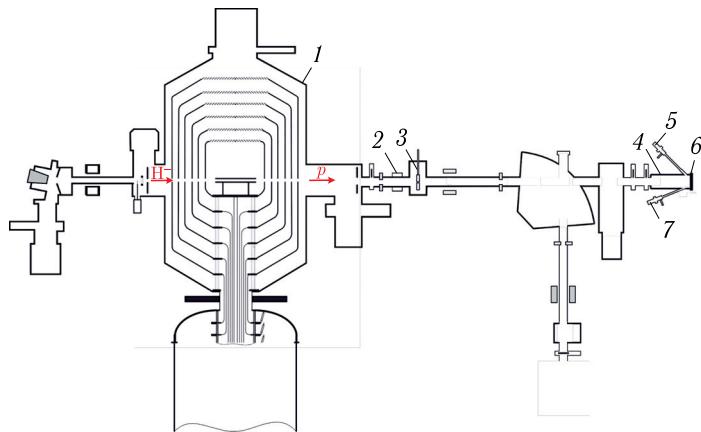


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией; 2 — неразрушающий трансформатор постоянного тока; 3 — коллиматор; 4 — мишенный узел; 5 — α -спектрометр под углом 135°; 6 — мишень; 7 — α -спектрометр под углом 168°

Новосибирского завода химконцентратов. Содержание изотопа литий-7 в природном литии варьируется от 92,41 [3] до 92,58 % [4]; мы будем далее полагать содержание лития-7 в природном литии равным среднему значению, а именно 92,5%.

Термическое напыление лития на мишень в вакууме осуществляют на отдельном стенде [5]. Стенд представляет собой вакуумную камеру со средствами вакуумной откачки, в которой на ввод движения с шаговым двигателем установлен титановый стакан с плоским керамическим нагревателем инфракрасного излучения. Перед напылением необходимое количество лития с точностью 0,1 мг взвешивают на лабораторных микровесах OHAUS (США) внутри перчаточного бокса. Способ напыления гарантирует равномерное распределение лития на медной подложке. Таким образом, взвешенное количество лития легко переводится в толщину литиевого слоя на мишени с точностью $\sim 10\%$.

Другой способ оценить толщину литиевого слоя мишени заключается в измерении проводимости воды после удаления лития с мишени. Конечно, стоит учитывать, что данный метод разрушает мишень и применим только после завершения основного эксперимента. Точность данного метода составляет $\sim 10\%$.

Предпочтительнее для измерения толщины литиевого слоя использовать *in situ* методы, не разрушающие мишень. Так, для определения толщины и элементного состава образца используют метод спектроскопии ионного рассеяния. Суть метода заключается в облучении мишени пучком протонов или дейtronов и измерении энергетического спектра обратно отраженных протонов или дейtronов, теряющих энергию в результате упругого или неупругого рассеяния на атомных ядрах мишени. Спектр анализируется с помощью программы SIMNRA v.7.03 (Max Planck Institute for Plasma Physics, Germany) [6]. Для измерения интенсивности и энергии обратно отраженных протонов на один из патрубков мишенного узла устанавливается α -спектрометр на основе кремниевого детектора ПДПА-1К и цифрового спектрометрического устройства ЦСУ-1К (Институт физико-технических проблем, Дубна, Россия) [7]. На рис. 2 представлен пример спектра, полученного от литиевой мишени толщиной ~ 30 мкм

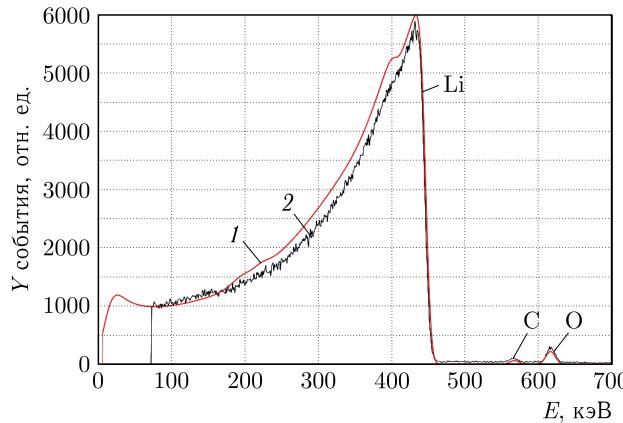


Рис. 2. Спектр обратно отраженных протонов для слоя лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 — экспериментальные данные; 2 — расчетные, полученные с помощью программы SIMNRA; Li — сигнал от протонов, отраженных от лития; C — от углерода; O — от кислорода

при облучении протонным пучком, измеренного α -спектрометром. Спектр также дает информацию о составе мишени. В составе присутствуют тяжелые примеси в виде кислорода и углерода. Точность данного метода составляет $\sim 10\%$.

Исследование химического состава верхнего слоя мишени (~ 2 нм) проведено методом рентгеноэлектронной спектроскопии в Институте неорганической химии СО РАН, Новосибирск, с помощью фотоэлектронного спектрометра FleXPS (SPECS). Установлено, что поверхность мишени состоит из карбоната лития (Li_2CO_3).

Наша команда предложила и разработала *in situ* метод, значительно повышающий точность измерения толщины используемой мишени [5]. Метод основан на сравнении выхода 478-кэВ фотонов (1 на рис. 3) из исследуемого литиевого слоя и из толстого, облучаемого 1,85-МэВ протонами (рис. 3). Толстым слоем называем слой лития толщиной более длины пробега протона в литии до энергии порога реакции ${}^7\text{Li}(p, p'\gamma){}^7\text{Li}$, равной 478 кэВ. При выборе толщины лития используем выражение для скорости потери энергии протона S в литии в зависимости от его энергии E [8]:

$$S = \frac{S_{\text{low}} S_{\text{high}}}{S_{\text{low}} + S_{\text{high}}} \text{ эВ}/(10^{15} \text{ атом}/\text{см}^2), \quad (1)$$

где $S_{\text{low}} = A_1 E^{0,45}$, $S_{\text{high}} = (A_2/E) \ln(1 + A_3/E + A_4 E)$, $A_1 = 1,6$, $A_2 = 725,6$, $A_3 = 3013$, $A_4 = 0,04578$, E в кэВ. Используя данное выражение для скорости потери энергии протона в литии и учитывая практически прямолинейное распространение протона в литии, найдем глубину проникновения; она составляет 145 мкм для 1,85-МэВ протона и 17 мкм для 0,478-МэВ протона. Следовательно, протоны с начальной энергией 1,85 МэВ будут генерировать 478-кэВ фотоны вплоть до глубины 128 мкм от поверхности лития. Зная отношение интенсивности излучения 478-кэВ фотонов на единицу тока из исследуемого литиевого слоя и из толстого [8], получим толщину исследуемого литиевого слоя. К примеру, мы измерили толщину тонкой литиевой мишени, созданной для эксперимента по измерению сечения ядерной реакции ${}^7\text{Li}(p, \alpha){}^4\text{He}$ [9], погрешность измерения составила 3 %, $l = (0,422 \pm 0,013)$ мкм.

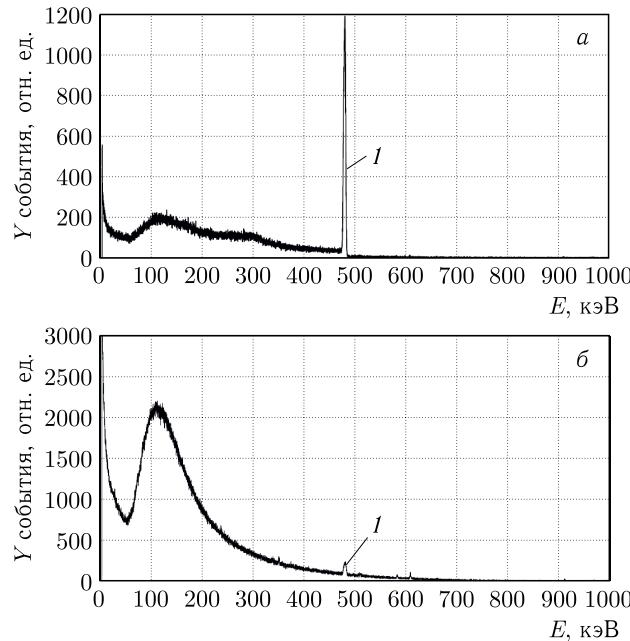


Рис. 3. Спектр от HPGe γ -спектрометра: а) толстый слой лития; б) тонкий слой лития

2.2. Борная мишень. Тонкая борная мишень представляет собой тонкий слой бора (~ 1 мкм), напыленный на медную подложку с помощью магнетрона в Институте сильноточной электроники в Томске. Напыление производилось в атмосфере азота особой чистоты (99,9 %), поэтому в составе мишени присутствует не только природный бор кристаллической плотности, но и соединения бора с азотом. Для определения скорости напыления бора на медную и алюминиевую подложки использован метод микроинтерферометрии с помощью прибора МИИ-4 в пяти точках на поверхности подложки, где покрытие было удалено. Средняя скорость нанесения покрытия в условиях эксперимента равна 8,4 нм/мин, ожидаемая неоднородность покрытия — 10 %. Для определения состава мишени использован метод микрорентгеноспектрального анализа. Установлено, что в покрытии присутствуют в основном бор и азот солями 84,5 и 15,5 ат. % соответственно (рис. 4).

Также в Институте сильноточной электроники проведен анализ шероховатости пленок бора с помощью атомно-силового микроскопа Solver P47. Установлено, что неоднородность толщины покрытия на макроскопическом уровне связана с особенностью функционирования магнетронного разряда. Из приведенных на рис. 5 данных следует, что шероховатость Ra-поверхности участка покрытия бора размером 1×1 мкм толщиной 1 мкм составляет около 0,2 нм, что на три порядка величины превышает толщину покрытия. Таким образом, покрытие повторяет рельеф поверхности подложки и его поверхность достаточно однородна на микроскопическом уровне.

Дополнительное измерение толщины борной пленки проведено на микроинтерферометре Линника МИИ-4 в Институте ядерной физики, Новосибирск. При данном методе на пленку бора падают два массива лучей: первый отражается от поверхно-

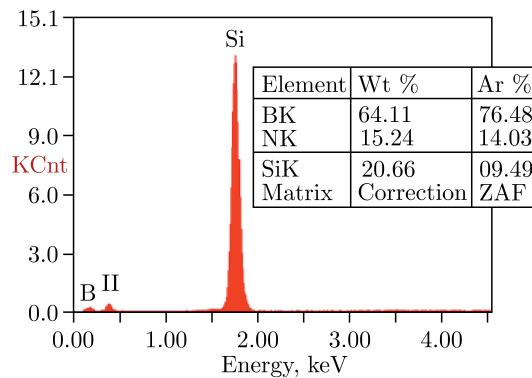


Рис. 4. Анализ состава борного покрытия, нанесенного на кремниевую подложку KEF-25 с ориентацией кристаллов $\langle 100 \rangle$, выполненный с помощью растрового электронного микроскопа Philips SEM 515 с приставкой-микроанализатором EDAX ECON IV

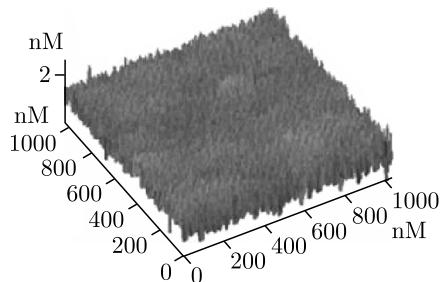


Рис. 5. Морфология и характеристики поверхности борного покрытия толщиной 1 мкм, нанесенного в среде азота на поверхность кремния, полученные с помощью сканирующего атомно-силового микроскопа Solver P47 с кантилевером NSG-01

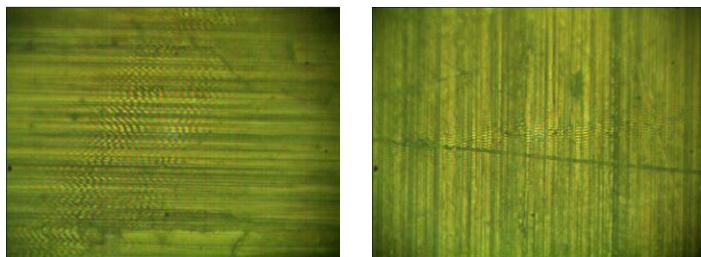


Рис. 6. Снимки борной мишени (слева — медь с бором, справа — медь), выполненные с помощью микроинтерферометра Линника

сти пленки, второй проходит ее насквозь и отражается от медной подложки (рис. 6). Набега фаз между лучами не возникает, так как лучи между собой не интерферируют, что таким образом привлекает закон преломления Снеллиуса и коэффициент преломления бора, равный трем, получаем толщину пленки 1,1 мкм с точностью 20%.

In situ методы определения толщины бора аналогичны описанным выше для лития. Рассмотрим подробнее метод сравнения выхода α -частиц из тонкой и толстой борных мишеней [5, 10]. Итак, сначала мы измерили выход α -частиц из тонкой и толстой мишеней. Аналогично литиевой мишени, толстая борная мишень — это мишень,

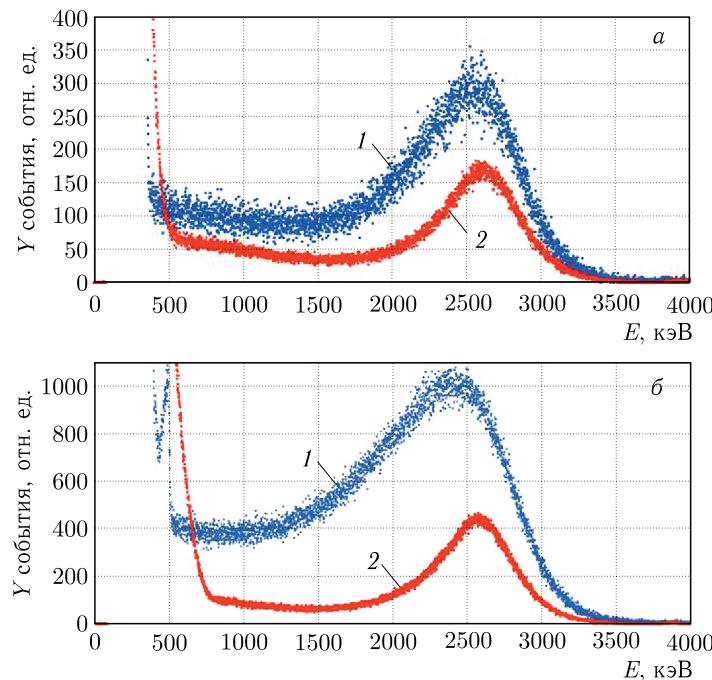


Рис. 7. Спектр от α -спектрометра при энергии протонного пучка 0,5 (а) и 0,7 МэВ (б): 1 — толстая мишень; 2 — тонкая мишень

в которой протоны замедляются до энергии ниже порога реакции генерации частиц. Зная зависимость выхода частиц от протонной энергии и измеряя выход частиц из тонких и толстых мишеней, можно определить энергию протона и, как следствие, определить толщину этого слоя. В качестве толстой мишени использовалась пластина из карбида бора, а в качестве тонкой вышеупомянутая борная мишень. Измерения проводились при энергиях протонов 0,5 и 0,7 МэВ; α -спектрометр был установлен под углом 168°. Сигнал α -спектрометра, нормированный на поток протонов, показан на рис. 7. Спектр слева от 400–700 каналов соответствует обратно отраженным протонам, спектр справа от этих каналов соответствует α -частицам в реакции $^{11}\text{B}(p, \alpha_1)^8\text{Be}^*$. Можно заметить, что количество зарегистрированных α -частиц из толстой мишени больше, чем из тонкой: в 2,10 раза при энергии 0,5 МэВ и в 3,95 раза при энергии 0,7 МэВ. Воспользовавшись формулой (1), мы рассчитали потери энергии протоном. Учитывая процентное содержание углерода в толстой мишени и азота в тонкой, установленное после обработки спектра от α -спектрометра, мы определили линейную плотность бора в тонкой борной мишени как $8,48 \cdot 10^{18}$ атом/ см^2 (0,65 мкм бора кристаллической плотности) с точностью 10%. Данная оценка хорошо согласуется с результатами приведенных ранее методов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Используя реализованный *in situ* метод измерения толщины тонкой мишени с высокой точностью и применяя ряд дополнительных методик, наша команда изме-

рила 14 сечений ядерных реакций при взаимодействии лития и бора с пучками протонов и дейtronов [9–13]: $^7\text{Li}(p, p'\gamma)^7\text{Li}^*$, $^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$, $^6\text{Li}(d, \alpha)^4\text{He}$, $^6\text{Li}(d, p)^7\text{Li}$, $^6\text{Li}(d, p)^7\text{Li}^*$, $^7\text{Li}(d, \alpha)^5\text{He}$, $^7\text{Li}(d, n\alpha)^4\text{He}$, $^{11}\text{B}(p, \alpha_0)^8\text{Be}$, $^{11}\text{B}(p, \alpha_1)^8\text{Be}^*$, $^{10}\text{B}(d, \alpha_0)^8\text{Be}$, $^{10}\text{B}(d, \alpha_1)^8\text{Be}^*$, $^{10}\text{B}(d, p_2)^9\text{Be}^*$, $^{11}\text{B}(d, \alpha_0)^9\text{Be}$ и $^{11}\text{B}(d, \alpha_2)^9\text{Be}^*$.

Финансирование. Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 19-72-30005), <https://rscf.ru/project/19-72-30005>.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Taskaev S., Berendeev E., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Koskharev A., Makarov A., Ostreinov G., Porosev V., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E., Sorokin I., Sycheva T., Verkhovod G. Neutron Source Based on Vacuum Insulated Tandem Accelerator and Lithium Target // Biology. 2021. V. 10. P. 350.
2. Taskaev S. Accelerator-Based Neutron Source VITA. M.: FizMatLit, 2024.
3. Handbook of Stable Isotope Analytical Techniques. 2009. V. II. P. 1123–1321.
4. Lieberman K., Alexander G.J., Sechzer J.A. Stable Isotopes of Lithium: Dissimilar Biochemical and Behavioral Effects // Experientia. 1986. V. 42. P. 985–987.
5. Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koskharev A. et al. Method for *In Situ* Measuring the Thickness of a Lithium Layer // J. Instrum. 2020. V. 15. P. P10006.
6. SIMNRA v. 7.03 with SigmaCalc 2.0 for Single User. License No. 1801-4848-WT-WA.
7. Кремниевые детекторы альфа-излучения ПДПА-1К. <https://iftp.ru/cat/kremnievye-detektorы-alfa-izlucheniya-pdp-1k/>.
8. Andersen H., Ziegler J. Hydrogen Stopping Powers and Ranges in All Elements. V. 3. Stopping and Ranges of Ions in Matter. New York: Pergamon Press, 1977. 321 p.
9. Taskaev S., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Makarov A., Ostreinov G., Savinov S., Sokolova E. Cross-Section Measurement for the $^7\text{Li}(p, \alpha)^4\text{He}$ Reaction at Proton Energies 0.6–2 MeV // Nucl. Instr. Meth. B. 2022. V. 525. P. 55–61.
10. Taskaev S., Bessmeltsev V., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Nikolaev A., Oks E., Ostreinov G., Savinov S., Shuklina A., Sokolova E., Yushkov G. Measurement of the $^{11}\text{B}(p, \alpha_0)^8\text{Be}$ and the $^{11}\text{B}(p, \alpha_1)^8\text{Be}^*$ Reactions Cross-Sections at the Proton Energies up to 2.2 MeV // Nucl. Instr. Meth. B. 2024. V. 555. 165490.
11. Taskaev S., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Koskharev A., Makarov A., Savinov S., Shchudlo I., Sokolova E. Measurement of the $^7\text{Li}(p, p'\gamma)^7\text{Li}$ Reaction Cross-Section and 478 keV Photon Yield from a Thick Lithium Target at Proton Energies from 0.65 MeV to 2.225 MeV // Nucl. Instr. Meth. B. 2021. V. 502. P. 85–94.
12. Taskaev S., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Ostreinov G., Savinov S., Sokolova E. Measurement of Cross-Section of the $^6\text{Li}(d, \alpha)^4\text{He}$, $^6\text{Li}(d, p)^7\text{Li}$, $^6\text{Li}(d, p)^7\text{Li}^*$, $^7\text{Li}(d, \alpha)^5\text{He}$, and $^7\text{Li}(d, n\alpha)^4\text{He}$ Reactions at the Deuteron Energies from 0.3 MeV to 2.2 MeV // Nucl. Instr. Meth. B. 2024. V. 554. P. 165460.
13. Taskaev S., Bessmeltsev V., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov Ia., Nikolaev A., Oks E., Ostreinov G., Savinov S., Shuklina A., Sokolova E., Yushkov G. Measurement of the $^{10}\text{B}(d, \alpha_0)^8\text{Be}$, $^{10}\text{B}(d, \alpha_1)^8\text{Be}^*$, $^{10}\text{B}(d, p_2)^9\text{Be}^*$, $^{11}\text{B}(d, \alpha_0)^9\text{Be}$, and $^{11}\text{B}(d, \alpha_2)^9\text{Be}^*$ Reactions Cross-Sections at the Deuteron Energies up to 2.2 MeV // Nucl. Instr. Meth. B. 2024. V. 557. 165527; doi.org/10.1016/j.nimb.2024.165527.

Получено 28 октября 2024 г.