

**ФИЗИЧЕСКИЕ ПРИБОРЫ ДЛЯ ЭКОЛОГИИ,
МЕДИЦИНЫ, БИОЛОГИИ**

УДК 541.183.56:669.884

**ВЛИЯНИЕ ОСТАТОЧНОГО ГАЗА НА ЛИТИЕВЫЙ СЛОЙ
НЕЙТРОНОГЕНЕРИРУЮЩЕЙ МИШЕНИ**

© 2008 г. **Б. Ф. Баянов***, **С. Ю. Таскаев****, **В. И. Ободников*****, **Е. Г. Тишковский******

**Институт ядерной физики им. Г.И. Будкера СО РАН
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Лаврентьева, 11*

***Новосибирский государственный университет
Россия, 630090, Новосибирск, ул. Пирогова, 2*

****Институт физики полупроводников СО РАН
Россия, 630090, Новосибирск, просп. Лаврентьева, 13*

Поступила в редакцию 13.07.2007 г.

В Институте ядерной физики СО РАН сооружается на основе ускорителя источник эпитепловых нейтронов, который может быть использован для проведения нейтронозахватной терапии рака в онкологической клинике. Одним из основных элементов установки является литиевая нейтроногенирующая мишень, получаемая напылением лития на подложку мишени. С использованием масс-спектрометра вторичных ионов изучено влияние остаточного газа на состав литиевого слоя.

PACS: 34.35.+a

Проведенные на ядерных реакторах клинические испытания нейтронозахватной терапии [1] злокачественных опухолей показали ее эффективность [2], и в настоящее время в Институте ядерной физики СО РАН сооружается компактный источник эпитепловых нейтронов на основе ускорителя [3], предназначенный для размещения в онкологической клинике. Генерация нейтронов осуществляется в результате пороговой реакции ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ при сбросе протонного пучка с энергией 2–2.5 МэВ на литиевую мишень [4]. Для проведения терапии требуется стабильный контролируемый поток нейтронов, однако в эксперименте на ускорителе в Бирмингеме [5] при сбросе протонного пучка на литиевую мишень наблюдалось снижение выхода нейтронов на 10% на единицу тока за 3 ч. Предполагалось, что возможной причиной этого может быть изменение состава литиевого слоя в результате его взаимодействия с остаточным газом, поскольку выход нейтронов, например, из нитрида лития в 1.66 раза меньше, чем из чистого лития.

В данной работе представлены результаты исследования методом масс-спектрометрии вторичных ионов (м.с.в.и.) распределения элементного состава по толщине литиевых слоев, экспонированных в различных вакуумных условиях, и оценки на основе этих данных возможности уменьшения выхода нейтронов из-за взаимодействия лития с остаточным газом.

ЭКСПЕРИМЕНТ

Напыление литиевого слоя проводилось на созданном в Институте ядерной физики СО РАН стенде. Разработанное нами устройство для напыления представляло собой нагреваемый объем с круговой щелью, размещенный на перемещаемой тарелке шибера. Нагревание в вакууме позволяло практически весь литий, помещенный в этот объем, равномерно перенести на охлаждаемую мишень [6], в том числе и на образец, для проведения последующих масс-спектрометрических исследований. В качестве образца использовалась танталовая пластина размером 4 × 8 мм, толщиной 1 мм, очищенная в ультразвуковой ванне. Пластина прижималась через тонкий слой индия к узлу транспортировки (рис. 1). Последний присоединялся к мишени (рис. 2), в центре которой предварительно было выполнено отверстие.

На мишени вблизи образца располагался нагреватель с навешенными на нем алюминиевыми пластинками. При его нагреве алюминий напылялся тонким слоем на литиевый слой для его защиты от влияния воздуха при последующем вскрытии устройства. Нагреватель изготовлен по методике [7] из 5 вольфрамовых проволок диаметром 0.3 мм, свитых сначала в жгут, а затем в спираль при их нагревании постоянным током.

В эксперименте исследовали три образца, на которые предварительно напыляли литиевый слой толщиной ~80 мкм. Затем образцы выдерживали в вакууме $2 \cdot 10^{-5}$ Торр различное время: первый образец покрывали защитным слоем алюминия толщиной ~1 мкм сразу после напыления

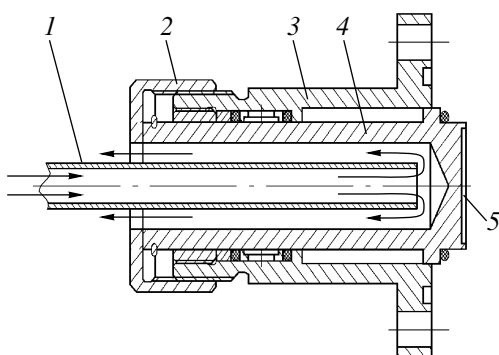


Рис. 1. Узел транспортировки образца. 1 – сопло, 2 – накидная гайка, 3 – корпус, 4 – поршень, 5 – место для размещения образца.

литиевого слоя, второй – через 30 мин, третий – через 1 ч. После этого в вакуумную камеру напускали газообразный Ag под избыточным давлением. Поршень узла транспортировки вдвигали внутрь, узел снимали при поддуве Ag через трубку 5 (см. рис. 2) и закрывали диском. Продолжающийся поддув аргона позволил существенно уменьшить взаимодействие воздуха с образцом в процессе транспортировки образца на масс-спектрометр вторичных ионов MIQ-256 (производства CAMECA-RIBER, Франция).

В течение короткого времени (≤ 5 мин), которое требовалось для извлечения образцов из узла транспортировки и установки на платформу масс-спектрометра, образцы контактировали с воздухом.

Хотя литий был покрыт слоем алюминия, образцы темнели, что указывает на образование нитрида лития на поверхности. Далее платформу с образцом помещали в установку MIQ-256 с рабочим вакуумом 10^{-10} Торр. При этом время пребывания образцов в вакууме ниже 10^{-3} Торр не превышало 10 мин, а в вакууме ниже 10^{-8} Торр – 20 мин.

В проведенных экспериментах пучок первичных ионов O_2^+ с энергией 10 кэВ бомбардировал поверхность исследуемого образца под углом 45° . Для выхода на нужную глубину распыление проводилось пучком с током 1.2 мкА, сканируемым по растру 250×250 мкм. Запись масс-спектра в диапазоне $0 - 60 m/e$ проводилась при токе пучка 0.05 мкА со сканированием по растру 100×100 мкм. Характерная зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы m к заряду e представлена на рис. 3.

ПОЛУЧЕННЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Хорошо известно [8], что при температуре ниже 200°C литий в основном взаимодействует с азотом, образуя нитрид лития Li_3N – вещество черного цвета. Возможны и другие соединения, в частности: оксид лития Li_2O , который образуется при температуре выше 200°C , гидрид лития – при температуре выше 400°C , карбид лития Li_2C_2 – при еще более высоких температурах.

По условиям эксперимента на ускорителе в Бирмингеме температура была порядка 120°C , поэтому можно предположить, что возможное изменение свойств литиевого слоя связано, в первую очередь, с образованием Li_3N . При толщине литиевой пленки ~ 1 мм, учитывая, что торможение протонов от первоначальной энергии 2.8 МэВ до порога генерации нейтронов 1.882 МэВ происходит в литии на длине 137 мкм [9], для уменьшения выхода нейтронов на 10% требуется, чтобы 25%

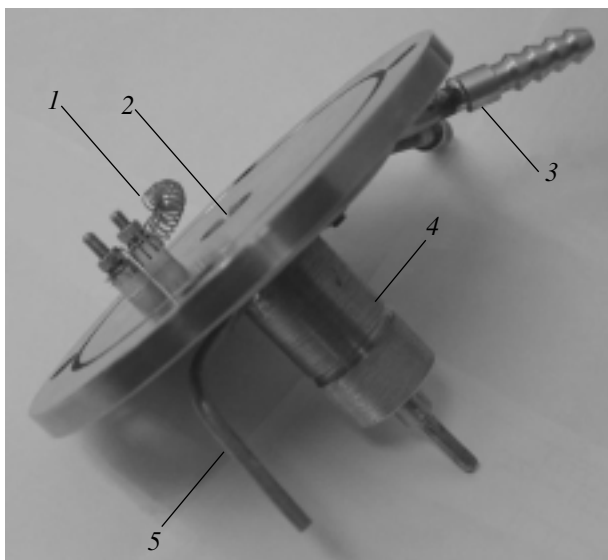


Рис. 2. Мишень с нагревателем и узлом транспортировки. 1 – нагреватель для напыления алюминия, 2 – место для образца, 3 – ввод водяного охлаждения, 4 – узел транспортировки образца, 5 – трубка для поддува аргона.

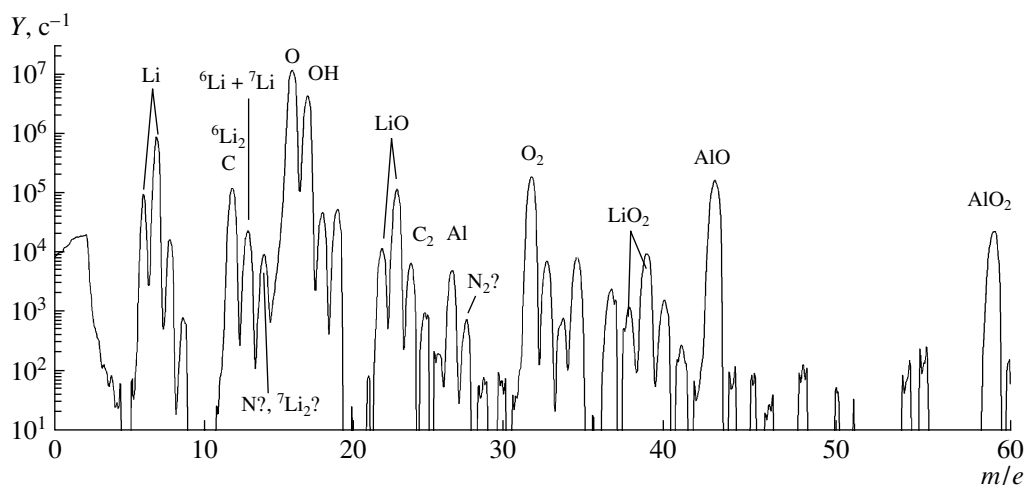


Рис. 3. Характерная зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от отношения массы m к заряду e .

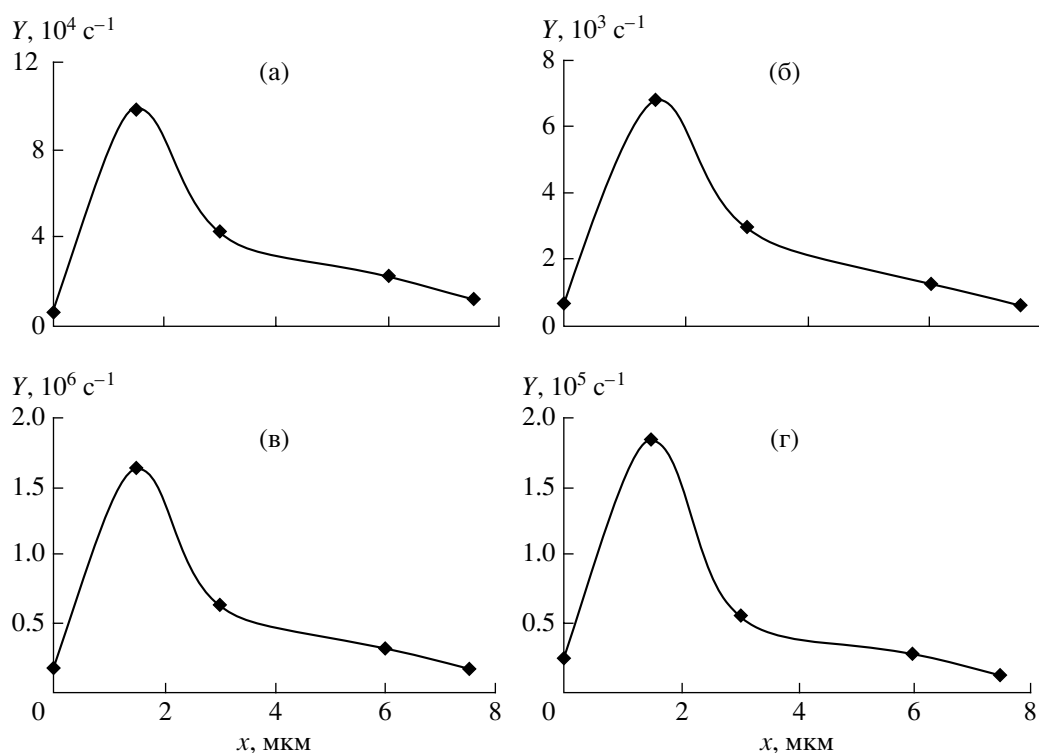


Рис. 4. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины слоя для ионов с $m/e = 27$ (а), 34 (б), 43 (в) и 59 (г).

лития в нейтроногенерирующем слое заменились Li_3N [4].

Если приведенные выше рассуждения справедливы, то в нашем эксперименте процесс образования именно Li_3N должен был ярко проявиться в амплитудах пиков, соответствующих выходу отрицательно заряженных кластеров (комплексов), содержащих азот. Как показали измерения, полученные масс-спектры для всех трех образцов

практически не различаются, поэтому далее подробно рассмотрим только результаты, полученные на втором образце (30 мин выдержки в вакууме $2 \cdot 10^{-5}$ Торр).

На рис. 4–6 приведены зависимости выхода вторичных ионов от глубины слоя. Глубина, на которой анализируется состав, определена пересчетом скорости травления кремния, измеренной на эталонных образцах, на скорость травления

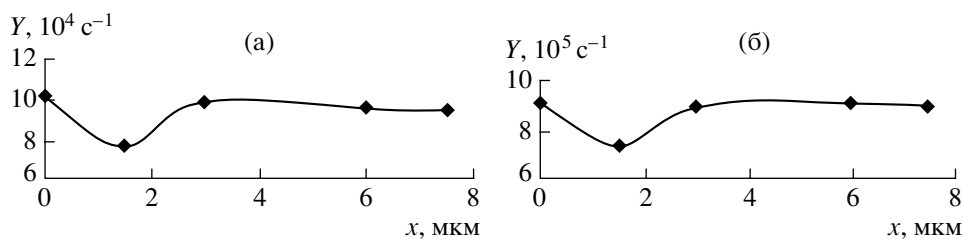


Рис. 5. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины слоя для ионов с $m/e = 6$ (а) и 7 (б).

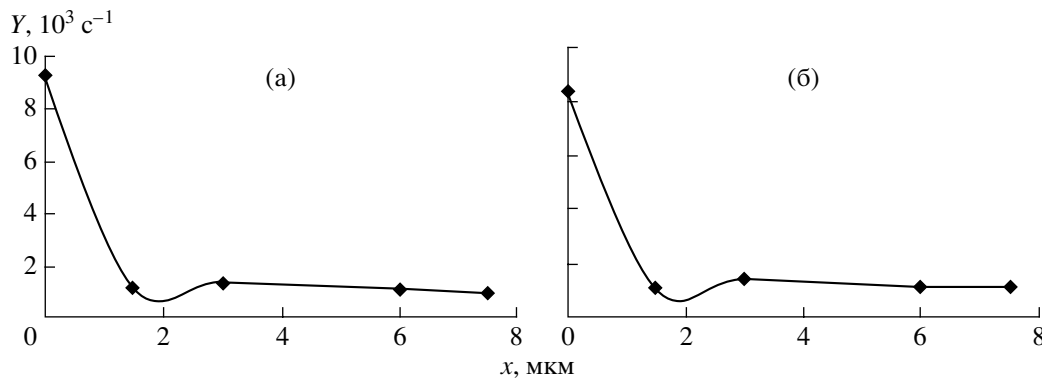


Рис. 6. Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов от глубины слоя для ионов с $m/e = 8$ (а) и 35 (б).

лития. Расчеты, выполненные с помощью программы SRIM-2006, показали, что скорость травления лития в 1.2 раза меньше скорости травления кремния (и в 1.1 раза – алюминия). Проведенная оценка вполне допустима, поскольку в данном случае для выявления эффекта не требуется точного знания глубины. Также следует отметить, что в данном случае не было необходимости применять стандартную методику микроэталониров (см., например, [10]), достаточно было измерить лишь относительный выход отрицательных ионов.

Анализ рис. 4 показывает, что защитный алюминиевый слой однозначно идентифицируется сигналами от ионов с отношением $m/e = 27$ (Al), 34 (AlLi), 43 (AlO) и 59 (AlO₂), толщина этого слоя составляет ~ 1 мкм, как и прогнозировалось при напылении.

Зависимость выхода вторичных отрицательных ионов с отношением $m/e = 6$ и 7 от глубины слоя представлена на рис. 5. Сигналы соответствуют двум изотопам лития: ⁶Li и ⁷Li. Анализ кривых показывает, что литий присутствует также в слое алюминия, которым защищали поверхность. Вероятнее всего это связано либо с проникновением лития в алюминиевый слой, либо с его захватом в процессе напыления. Согласно рис. 5, интенсивность сигналов от изотопов лития при движении сквозь алюминий в глубину мишени меняется незначительно, в пределах 20%. Это позволяет предположить, что смена распыляемого материала с алюминия на литий существенно не сказывается на выходе вторичных отрицательных ионов.

ла с алюминия на литий существенно не сказывается на выходе вторичных отрицательных ионов лития.

В то же время интенсивности сигналов, соответствующих таким соединениям лития, как гидрид лития LiH ($m/e = 8$) и нитрид лития Li₃N ($m/e = 35$), по глубине слоя алюминия, начиная от его поверхности и до внутренней границы со слоем лития, изменяются почти на порядок (рис. 6). Затем, до глубины 7.5 мкм, они практически не изменяются. Такое поведение сигналов может быть обусловлено соотношениями концентраций, при условии, что для соединений LiH ($m/e = 8$) и Li₃N ($m/e = 35$), так же как и для отрицательных вторичных ионов лития (см. рис. 5), смена распыляемого материала с алюминия на литий существенно не сказывается на выходе вторичных отрицательных ионов. Другими словами, если эти соединения, с точки зрения сродства к электрону, не обладают какими-либо особенностями, то такое поведение сигналов связано с различием содержания LiH и Li₃N в соответствующих распыляемых слоях.

Вероятнее всего, гидрид и нитрид лития образуются на поверхности во время извлечения образца из контейнера и установки его в масс-спектрометр. В течение 5 мин, когда образец находится на воздухе, и образуются соединения лития на поверхности, поскольку, как было установлено, литий проникает, либо захватывается в процессе

напыления в защитный алюминиевый слой. Косвенно это подтверждается и наблюдаемым потемнением образца во время пребывания на воздухе.

Таким образом, если считать, что в верхнем слое толщиной ~2 мкм весь литий перешел в соединение Li_3N , то доля лития, связанного в нитриде, на больших глубинах составляет ~10%. Следовательно, за 30 мин нахождения образца в вакууме $2 \cdot 10^{-5}$ Торр в нитрид лития могло превратиться <10% лития, что косвенно подтверждается чуть заметным изменением цвета литиевого слоя. Поэтому представляется маловероятным, чтобы в бирмингемском эксперименте, который проводили в значительно лучшем вакууме ($6 \cdot 10^{-7}$ Торр), за 3 ч в слое толщиной 100 мкм около 25% лития превратилось в нитрид лития.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Locher G.* // Am. J. Roentgenol. Radium Ther. 1936. V. 36. P. 1.
2. *Hatanaka H.* // Basic Life Sci. 1990. V. 54. P. 15.
3. *Bayanov B., Belov V., Bender E. et al.* // Nucl. Instrum. and Methods. in Phys. Res. A. 1998. V. 413. № 2–3. P. 397.
4. *Bayanov B., Belov V., Kindyuk V. et al.* // Applied Radiation and Isotopes. 2004. V. 61. № 5. P. 817.
5. *Brown A., Forsey K., Scott M.* Research and Development in Neutron Capture Therapy/Eds. W. Sauerwein et al. Italy, Bologna: Monduzzi Editore, 2002. P. 277.
6. *Баянов Б.Ф., Белов В.П., Журов Е.В., Таскаев С.Ю.* Препринт ИЯФ 2007–3. Новосибирск, 2007.
7. *Holland L.* Vacuum deposition of thin films. London: Chapman and Hall, 1956.
8. *Остроушко Ю. И., Бучихин П.И., Алексеева В.В. и др.* Литий, его химия и технология, М.: Атомиздат, 1960.
9. Hydrogen stopping powers and ranges in all elements/Ed. by H. Andersen. New York, Toronto, Oxford, Sydney, Frankfurt, Paris: Pergamon Press Inc., 1977.
10. *Черепов Е.И., Ободников В.И., Тишковский Е.Г.* // Наука–производству. 2001. № 12. С. 31.