

ИССЛЕДОВАНИЕ НАКОПЛЕНИЯ ПРИМЕСЕЙ В ТОНКОЙ ЛИТИЕВОЙ МИШЕНИ МЕТОДОМ СПЕКТРОСКОПИИ ИОННОГО РАССЕЯНИЯ

*М. И. Бикчурина^{а, б, 1}, Т. А. Быков^{а, б}, Д. А. Касатов^{а, б},
Я. А. Колесников^{а, б}, Е. О. Соколова^{а, б}, И. М. Щудло^{а, б},
С. Ю. Таскаев^{а, б}*

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

^б Новосибирский государственный университет, Новосибирск, 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 тандемный электростатический ускоритель частиц (ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией) для получения моноэнергетического пучка протонов или дейтронов с энергией от 0,3 до 2,3 МэВ, током до 10 мА, а также тонкую литиевую мишень для генерации мощного потока нейтронов в реакциях ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ и $\text{Li}(d, n)$. Установка используется для разработки бор-нейтронозахватной терапии и многих других приложений. Из литературных источников известно, что тяжелые примеси в составе литиевой мишени существенно снижают выход нейтронов и делают мишень непригодной для использования. Целью данной работы являлось исследование накопления примесей в тонкой литиевой мишени. Элементный состав образца определялся методом спектроскопии ионного рассеяния. В экспериментах определялся состав слоя лития сразу после напыления на медную подложку. Исследовались взаимодействие лития с воздухом и влияние примесей на выход нейтронов, а также накопление примесей при облучении мишени протонным пучком при плотности мощности пучка 1 и до 3,4 кВт/см².

An accelerator-based epithermal neutron source VITA created and functioning at the Budker Institute of Nuclear Physics SB RAS is proposed. VITA includes an originally designed tandem electrostatic particle accelerator (vacuum-insulated tandem accelerator) to produce a monoenergetic beam of protons or deuterons with energy from 0.3 to 2.3 MeV, current up to 10 mA, and a thin lithium target to generate a powerful neutron flow in ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ and $\text{Li}(d, n)$ reactions. The facility is used to develop a boron neutron capture therapy and many other applications. It is known from literature sources that heavy impurities in the composition of a lithium target significantly decrease the neutron yield and make the target unusable. The purpose of this work was to study the accumulation of impurities in a thin lithium target. The elemental composition of the sample was determined by an ion scattering spectroscopy. The composition of the lithium layer immediately after evaporation onto a copper substrate was determined in the experiments. The interaction of lithium with air and the effect of the impurities on the neutron yield were studied. The accumulation of impurities during proton beam irradiation of the target at a beam power density of 1 and up to 3.4 kW/cm² was investigated.

PACS: 29.20.–c

¹E-mail: M.I.Bikchurina@inp.nsk.su

ВВЕДЕНИЕ

Для большого количества различных приложений требуются нейтроны. Нейтроны генерируют в ядерных реакторах или с помощью ускорителей заряженных частиц наведением пучка высокоэнергетичных ионов на нейтроногенерирующую мишень. Одной из таких мишеней является литиевая, обеспечивающая интенсивный поток нейтронов с относительно низкой энергией в реакции ${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$ для нейтронозахватной терапии злокачественных опухолей [1, 2] или интенсивный поток быстрых нейтронов в реакции ${}^6\text{Li}(d, n)$ для радиационного тестирования перспективных материалов. В Институте ядерной физики СО РАН предложена и разработана тонкая литиевая мишень для эффективной генерации нейтронов [3–7]. Эту мишень используют в ускорительном источнике нейтронов ВИТА в Институте ядерной физики СО РАН для проведения научных исследований [8], в БНЗТ-центре в г. Сямынь (Китай) для лечения больных злокачественными опухолями методикой бор-нейтронозахватной терапии (БНЗТ) [9], планируют использовать в Национальном медицинском исследовательском центре онкологии им. Н. Н. Блохина в Москве для проведения БНЗТ. Актуальными задачами становятся определение ресурса литиевой мишени и разработка технологии поставки литиевой мишени от производителя к потребителю.

Цель данной работы состоит в том, чтобы определить наличие примесей в литиевой мишени, способных уменьшить выход нейтронов, изучить динамику их накопления при длительном облучении пучком ионов, определить ресурс мишени для эффективной генерации нейтронов, а также изучить взаимодействие литиевой мишени с воздухом для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя к потребителю.

1. СХЕМА УСТАНОВКИ

Исследование элементного состава литиевого слоя мишени и его изменения по мере облучения пучком протонов проведено на ускорительном источнике нейтронов ВИТА (рис. 1) в Институте ядерной физики СО РАН [8]. В ускорителе-тандеме с вакуумной изоляцией получают стационарный моноэнергетический пучок протонов с энергией от 0,3 до 2,3 МэВ, током до 10 мА и направляют его на литиевую мишень. Разработанная литиевая мишень является трехслойной: тонкий слой чистого металлического лития для генерации нейтронов, тонкий слой материала для поглощения протонов и тонкая медная подложка для эффективного теплосъема. Медная подложка представляет собой медный диск диаметром 144 мм, толщиной 8 мм. Со стороны протонного пучка на медный диск термическим способом напыляют тонкий слой лития кристаллической плотности диаметром 84 мм.

Для определения элементного состава образца используют метод спектроскопии ионного рассеяния [10]. Суть метода заключается в облучении мишени пучком протонов и измерении энергетического спектра обратно отраженных протонов, теряющих энергию в результате упругого или неупругого рассеяния на атомных ядрах мишени. Для определения глубинного распределения элементного состава исследуемого образца используют программу SIMNRA v.7.03 (Институт физики плазмы им. Макса Планка, Германия) [11]. Для измерения интенсивности и энергии обратно-отраженных протонов на один из патрубков мишенного узла, расположенный под углом 135° к оси

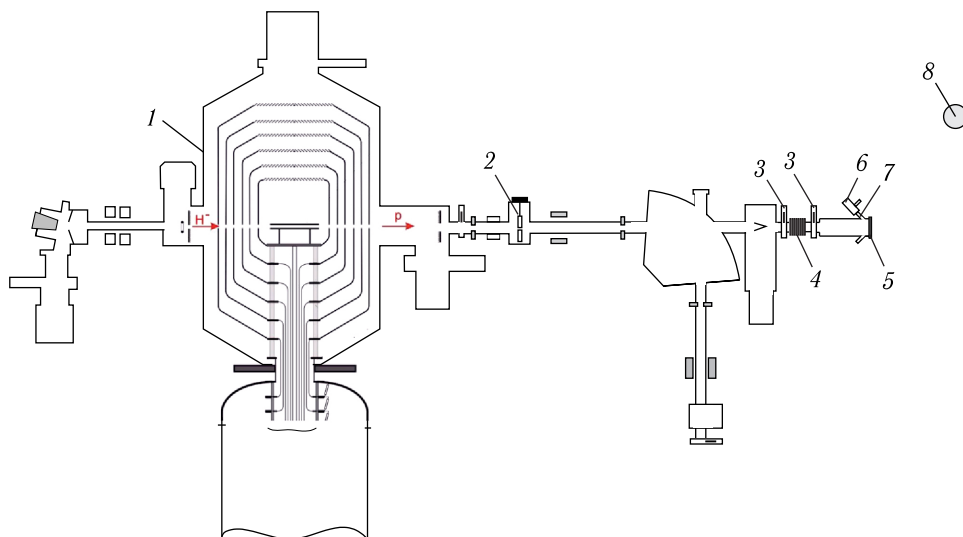


Рис. 1. Схема экспериментальной установки: 1 — ускоритель-тандем с вакуумной изоляцией; 2 — охлаждаемый коллиматор с апертурой 1 мм; 3 — шиберы; 4 — сильфон; 5 — видеокамера; 6 — α -спектрометр; 7 — литиевая мишень; 8 — дозиметр нейтронного излучения

пучка, через шибер установлен спектрометр α -излучения на основе кремниевого детектора ПДПА-1К и цифрового спектрометрического устройства ЦСУ-1К (Институт физико-технических проблем, Дубна).

2. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

2.1. Исследование чистоты свеженапыленного литиевого слоя. Для исследования чистоты свеженапыленного литиевого слоя стандартным способом изготавливают литиевые мишени и измеряют энергетический спектр обратно отраженных протонов. Характерный спектр обратно отраженных протонов, полученный при энергии протонов (1000 ± 2) кэВ, токе $(2,6 \pm 0,3)$ мкА, толщине слоя лития 30 мкм, представлен на рис. 2. На нем также представлен результат моделирования спектра обратно отраженных протонов программой SIMNRA при заданной толщине основного слоя лития 30 мкм и 37 нм примесей, предположительно карбоната лития и оксида лития. Толщину слоя, покрывающего литий, достаточно часто контролируют при изготовлении мишеней: она варьируется от 10 до 50 нм $((40-300) \cdot 10^{15} \text{ атом/см}^2)$.

Видно, что сигналы, обусловленные рассеянием протонов на кислороде и углероде, имеют вид отдельно стоящих узких пиков. Данное обстоятельство указывает на то, что эти слои расположены на поверхности лития либо внутри лития тонким слоем. Если бы кислород или углерод проникали в литий, то протоны, рассеянные на этих атомных ядрах, теряли энергию, проходя слой лития, что приводило бы к уширению их энергетического спектра.

Для доказательства того, что слой углерода находится на поверхности лития, использован узкий резонанс в сечении упругого рассеяния протона на атомном ядре

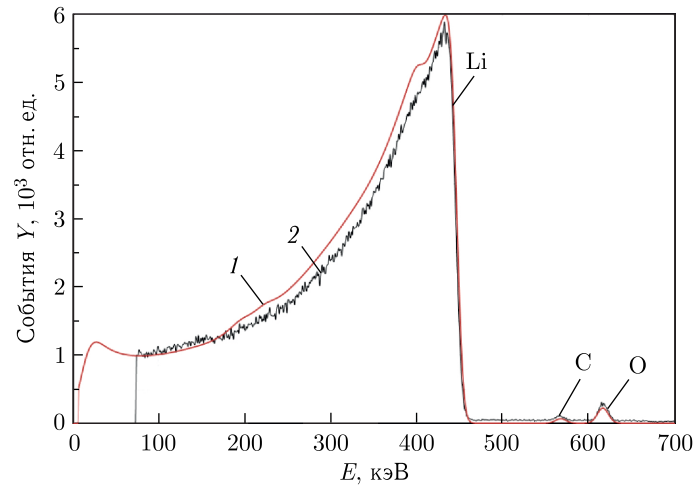


Рис. 2. Спектр обратно отраженных протонов для слоя свеженанесенного лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 — экспериментальные данные; 2 — расчетные, полученные с помощью программы SIMNRA; Li — сигнал от протонов, отраженных от лития, С — от углерода, О — от кислорода

^{12}C . Углерод-12 очень эффективно рассеивает 1,74-МэВ протон и практически не рассеивает 1,69-МэВ протон. Подобный яркий резонанс присутствует исключительно в сечении упругого взаимодействия протона с углеродом. Варьируя энергию протонов от 1,6 до 1,75 МэВ, измеряют спектр потока обратно отраженных протонов на атомных ядрах углерода (рис. 3). Если энергия протонов 1,74 МэВ, то сигнал углеродного пика максимален, если 1,69 МэВ — минимален (рис. 4). Это означает, что слой, содержащий атомные ядра углерода, находится на поверхности лития. Если бы углерод был внутри лития, то рассеянному протону необходимо было бы потерять часть энергии на прохождение слоя лития, так что экстремумы в интенсивности сигнала были

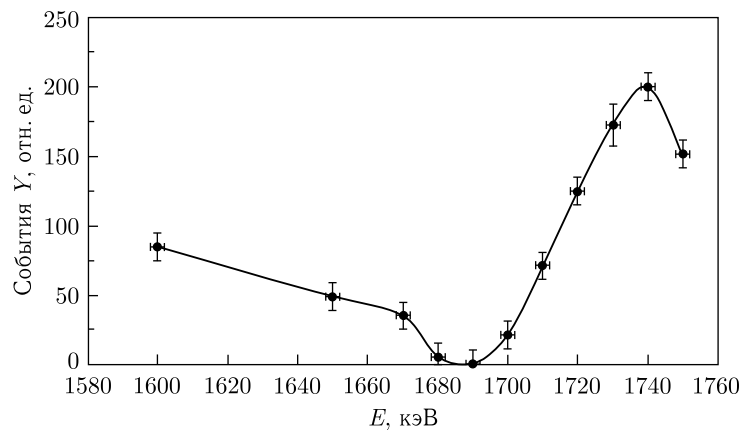


Рис. 3. Зависимость интенсивности пика углерода Y от энергии протонов E

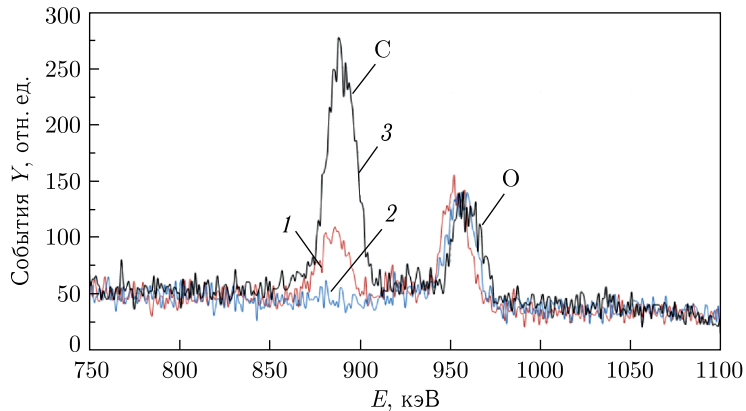


Рис. 4. Сигнал обратно отраженных протонов от углерода (С) и кислорода (О) при энергии протонов: 1 — 1,65; 2 — 1,69; 3 — 1,74 МэВ

бы сдвинуты в область меньших энергий относительно экстремумов в сечении. Таким образом, установлено, что поверхность литиевого слоя при его напылении на стенде покрывается тонким слоем примесей, содержащим атомные ядра углерода, кислорода и лития.

2.2. Исследование влияния воздуха на чистоту литиевого слоя. Литий — химически активный металл, поэтому обычно литиевую мишень изготавливают, хранят и используют только в вакууме. Мы изучили устойчивость мишени к атмосферному воздуху. Измерение спектра проводили сразу после напыления лития с сохранением вакуума в мишенном узле $\leq 10^{-3}$ Па. Затем в мишенный узел напустили воздух и откачали его через 1 мин. После чего вновь проводили измерения α -спектрометром.

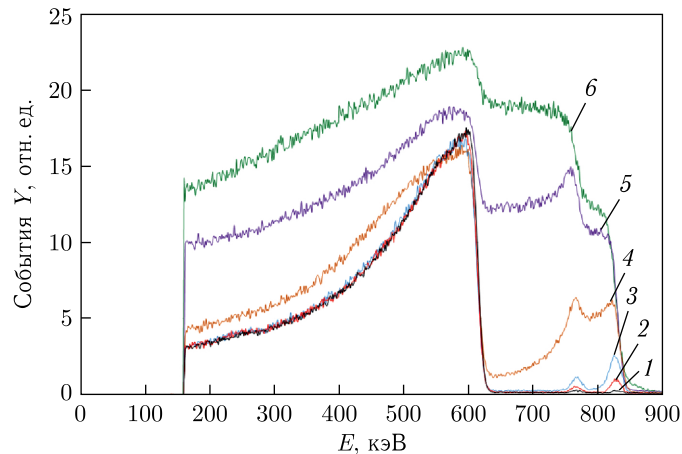


Рис. 5. Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении 1-МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 — 0 мин; 2 — 1 мин; 3 — 10 мин; 4 — 1 ч; 5 — 24 ч; 6 — неделя

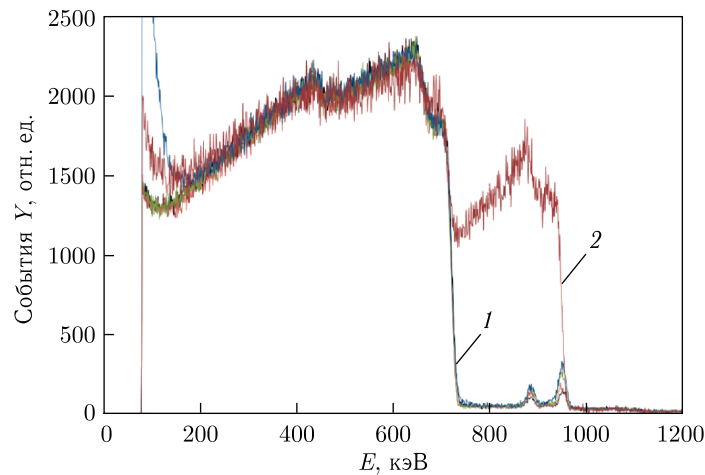


Рис. 6. Спектры литиевой мишени, регистрируемые α -спектрометром при облучении 1,65-МэВ протонами. Время экспозиции на воздухе: 1 — сут и менее; 2 — неделя

Эксперимент повторили для времени экспозиции на воздухе: 10 мин, 1 ч, 24 ч, неделя. Температуру и влажность воздуха контролировали датчиком температуры и влажности DHT11, температура воздуха равна $(23 \pm 1)^\circ\text{C}$, влажность $(50 \pm 20)\%$. Результаты измерения представлены на рис. 5. Анализируя спектры, можно заметить, что с увеличением времени экспозиции на воздухе накапливается и кислород, и углерод. Чем дольше мишень контактирует с воздухом, тем большее количество кислорода и углерода оседает на поверхности, причем скорость накопления кислорода выше. Со временем спектр протонов, отраженных от кислорода, становится более пологим. Это означает, что кислород начинает углубляться в материал мишени. Количество углерода к концу эксперимента возросло в 25 раз, а кислорода в 1300 раз. Такое накопление примесей приводит к существенному уменьшению выхода нейтронов, т. е. делает мишень непригодной к эксплуатации.

Аналогичный эксперимент проведен зимой, когда на улице отрицательная температура и в помещении включено отопление, так что влажность воздуха составляет 10%. Обработка экспериментальных результатов позволяет установить, что через 20 ч нахождения литиевой мишени на воздухе с низкой влажностью толщина слоя, содержащего атомные ядра кислорода, увеличилась с 38 до 140 нм, слоя углерода — с 2 до 7 нм (рис. 6). Такое накопление примесей практически не влияет на выход нейтронов. Следовательно, кратковременная экспозиция литиевой мишени на сухой воздух не ухудшает ее нейтроногенерирующие свойства, что может быть учтено при разработке технологии поставки литиевых мишеней от производителя к потребителю.

2.3. Исследование чистоты литиевого слоя при облучении пучком протонов.

Далее мы провели испытания литиевой мишени под пучком протонов. Мишень с толщиной лития ~ 30 мкм в течение 4 сут облучали пучком протонов с энергией 2 МэВ, током 1 мА, плотностью мощности $1,1$ кВт/см² и измеряли элементный состав мишени α -спектрометром до и после облучения. По результатам эксперимента установили, что количество кислорода и углерода растет во время облучения и выходит на насы-

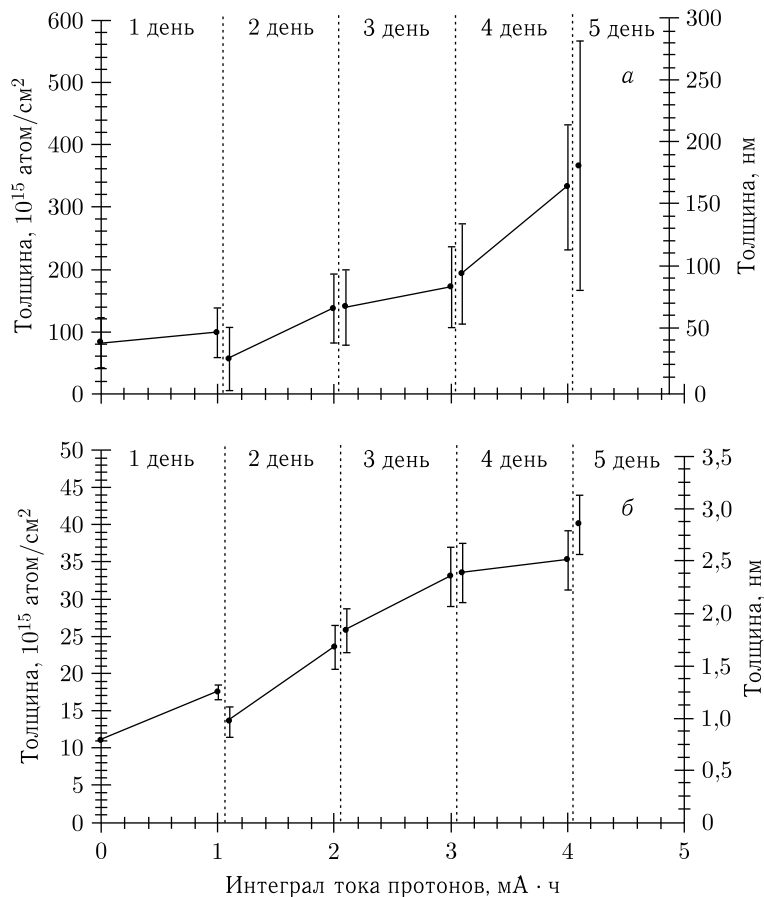


Рис. 7. а) Зависимость концентрации кислорода от интеграла тока; б) зависимость концентрации углерода от интеграла тока

шение (рис. 7). Содержание углерода на поверхности мишени увеличилось в 4 раза, кислорода в 5 раз. Наличие примесей уменьшает выход нейтронов на 0,86%. Накопленные примеси слабо влияют на выход нейтронов. Более того, они служат для литиевой мишени защитной пленкой от проникновения, например, азота.

В продолжение эксперимента провели облучение мишени при повышенной плотности мощности протонного пучка $3,4 \text{ кВт/см}^2$. При такой плотности мощности пучка температура медной подложки мишени, измеренная термосопротивлением, составила 240°C , и литий под пучком стал жидким (температура плавления лития равна 182°C). Хотя поверхность литиевой мишени располагается вертикально, литий не стекает. Наблюдение за поверхностью мишени с помощью видеокамеры позволяет предположить, что, конечно, литий стал жидким, но он оказался заключен между медной подложкой мишени и твердым слоем примесей. В составе мишени появляется более тяжелая примесь (рис. 8). Вероятнее всего, это чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистеринга меди при имплантации протонов [12]

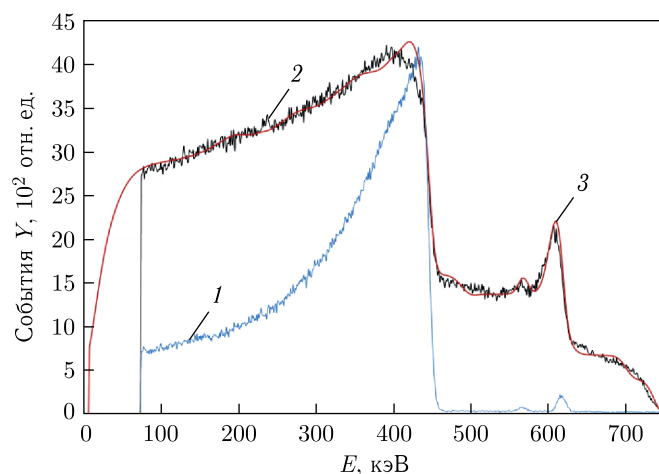


Рис. 8. Спектр обратно отраженных протонов для слоя чистого лития при энергии протонов 1 МэВ: 1 — сигнал обратно отраженных протонов от чистой мишени; 2 — сигнал обратно отраженных протонов от мишени после облучения пучком протонов мощностью $3,4 \text{ кВт/см}^2$; 3 — моделирование, построенное в программе SIMNRA

и поднятые с поверхности медной подложки конвекцией жидкого лития. Дальнейшее облучение мишени пучком протонов с такой мощностью будет приводить к накоплению меди внутри лития и снижать выход нейтронов, делая мишень непригодной к эксплуатации.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Для генерации нейтронов применяют тонкую литиевую мишень, в которой нейтроногенерирующий слой металлического лития толщиной от 30 до 100 мкм термически напыляют в вакууме на охлаждаемую медную подложку. Методом спектроскопии ионного рассеяния установлено следующее.

1. При термическом напылении лития в вакууме на медную подложку формируемый слой лития покрывается пленкой толщиной от 10 до 50 нм, содержащей литий, кислород $((40-300) \cdot 10^{15} \text{ атом/см}^2)$ и углерод $((5-20) \cdot 10^{15} \text{ атом/см}^2)$.

2. Образовавшаяся при напылении лития пленка, содержащая литий, кислород и углерод, защищает его от взаимодействия с сухим воздухом.

3. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности 1 кВт/см^2 пленка, содержащая литий, кислород и углерод, увеличивается в толщину в несколько раз, не приводя к заметному снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

4. При длительном облучении литиевой мишени пучком протонов с плотностью мощности выше 3 кВт/см^2 слой лития становится жидким, и в него проникают чешуйки меди, образовавшиеся в результате радиационного блистринга при имплантации протонов, что приводит к снижению нейтроногенерирующих свойств мишени.

Полученные знания представляются полезными для разработки технологии поставки литиевой мишени от производителя к потребителю и для определения ресурса литиевой мишени.

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

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Neutron and Capture Therapy: Principles and Applications / Eds.: W. Sauerwein, A. Wittig, R. Moss, Y. Nakagawa. Springer, 2012. 533 p.
2. *Дымова М., Taskaev S., Richter V., Kuligina E.* Boron Neutron Capture Therapy: Current Status and Future Perspectives // Cancer Commun. 2020. V. 40. P. 406–421.
3. *Bayanov B., Belov V., Kindyuk V., Oparin E., Taskaev S.* Lithium Neutron Producing Target for BINP Accelerator-Based Neutron Source // Appl. Rad. Isot. 2004. V. 61. P. 817–821.
4. *Bayanov B., Belov V., Taskaev S.* Neutron Producing Target for Accelerator-Based Neutron Capture Therapy // J. Phys. 2006. V. 41. P. 460–465.
5. *Taskaev С. Ю.* Ускорительный источник эпитепловых нейтронов. Дис. . . . д-ра физ.-мат. наук. 2014.
6. *Касатов Д. А.* Исследование материалов нейтроногенерирующей мишени для бор-нейтронозахватной терапии. Дис. . . . канд. физ.-мат. наук. 2022.
7. *Соколова Е. О.* Исследование и оптимизация тонкой литиевой мишени для генерации нейтронов. Дис. . . . канд. физ.-мат. наук. 2022.
8. *Taskaev S., Berendeev E., Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Koshkarev 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.
9. <https://us2.campaign-archive.com/?u=24744bc99c0bf8b960f093b4b&id=771f8e959e>
10. *Oura K., Lifshits V., Saranin A., Zotov A., Katayama M.* Surface Science — An Introduction. New York: Springer-Verlag, 2003. 440 p.
11. SIMNRA v. 7.03 with SigmaCalc 2.0 for Single User. License No. 1801-4848-WT-WA.
12. *Bikchurina M., Bykov T., Kasatov D., Kolesnikov I., Makarov A., Shchudlo I., Sokolova E., Taskaev S.* The Measurement of the Neutron Yield of the ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ Reaction in Lithium Targets // Biology. 2021. V. 10, No. 9. P. 824.

Получено 15 сентября 2023 г.