

FR84 00120

1. International conference on the chemistry and technology of the lanthanides and actinides
Venice (Italy) 5-10 Sep 1983
CEA-CONF--6955

PREPARATION DE DEPOTS EN COUCHES MINCES D'ACTINIDES POUR ETUDES EN PHYSIQUE NUCLEAIRE ET EN PHYSIQUE DU SOLIDE.

J. KWINTA, Ph. BROSSARD, J.J. MICHEL, J. THOREUX
Centre d'Etudes de BRUYERES-le-CHATEL
Service Contrôle Qualité
B.P. 561, 92542 MONTROUGE CEDEX, FRANCE

NOUVEAU SERVICE
Centre d'Etudes de
92542 BRUYERES-le-CHATEL CEDEX

Les cibles d'actinides employées en physique nucléaire ainsi que certains échantillons étudiés en physique du solide doivent, en général, répondre à des spécifications précises dont le respect conditionne la qualité des résultats recherchés. Dans le cas particulier des dépôts en couches minces le tableau ci-dessous résume l'essentiel des caractéristiques souhaitées.

- Eléments déposés : Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm, Cf ...
- Forme chimique : métal, oxyde, sel
- Aire des dépôts : 1 mm² à 10 cm²
- Epaisseur : typiquement 10-100 µg/cm²
- Homogénéité en épaisseur : meilleure que 10 %
- Quantité de matière : quelques milligrammes mise en oeuvre

Il faut en outre tenir compte des contraintes imposées d'une part par les rayonnements ionisants émis par les actinides à vie courte et d'autre part de la disponibilité limitée de certains isotopes.

La prise en compte de l'ensemble de ces facteurs conduit à concevoir des dispositifs de déposition et de contrôle installés en boîtes à gants dont nous présentons deux exemples qui permettent de répondre à une bonne partie des demandes d'échantillons. Il s'agit de l'électropulvérisation et de la pulvérisation par un faisceau d'ions. L'électrodéposition des actinides sur un support conducteur que ce soit en milieu aqueux ou organique ainsi que la déposition sous vide classique ne sont citées ici que pour mémoire bien que très utilisées en pratique.

Electropulvérisation

Le principe de l'électropulvérisation a été formulé dès 1917 par ZELENY (1) mais les applications en matière de fabrication de dépôts n'ont atteint un stade opérationnel qu'à la suite des travaux de VERDINGH et LAUER (2) effectués au CBNM de GEEL. Une solution de l'élément à déposer passe dans un capillaire qui contient une électrode portée à un potentiel positif par rapport au substrat conducteur placé dessous. A la sortie du capillaire, les forces électriques provoquent l'éclatement des gouttes en un brouillard extrêmement fin de sorte que le solvant s'évapore avant que le soluté n'atteigne le substrat.

En outre, les particules chargées soumises au champ électrique créé entre la pointe du capillaire et le substrat sont accélérées avant d'impacter ce dernier ce qui favorise l'adhérence du dépôt.

A titre d'exemple, dans le cas d'acétates d'actinides dissous dans le méthanol et dans les conditions opératoires habituelles on montre que le nombre de gouttelettes dispersées est de l'ordre de 10^8 par cm^3 de solution pulvérisée. Un dispositif de balayage est utilisé pour déplacer les substrats sous le faisceau de pulvérisation ce qui permet d'obtenir une excellente homogénéité des dépôts. Ces derniers, peuvent, si la tenue des substrats le permet, être calcinés à 450°C pour obtenir les oxydes. L'ensemble du système est aisément installable en boîte à gants.

Les cibles et autres échantillons réalisés par cette technique dans notre laboratoire concernent les isotopes des éléments suivants :

Th, Pa, Np, U, Pu, Am, Cm, Cf

Pulvérisation par un faisceau d'ions

L'un des inconvénients majeurs de l'électropulvérisation réside dans le fait qu'un nombre très limité d'espèces chimiques est pulvérisable : en pratique on n'utilise que les acétates et quelquefois les oxydes. Nous avons donc développé la technique de pulvérisation par un faisceau d'ions qui autorise en outre la mise en oeuvre de quantités de matière de l'ordre du milligramme. De plus, pratiquement toutes les espèces chimiques sont pulvérisables y compris les métaux. Le principe est le suivant : les ions (en général de gaz rares) produits par une source (du type duoplasmatron ou à cathode froide) sont accélérés et focalisés sur le matériau à pulvériser à l'aide d'une lentille électrostatique.

Les atomes éjectés sont recueillis sur les substrats convenablement disposés autour de la zone d'impact.

Les paramètres typiques de fonctionnement sont les suivants :

- intensité du faisceau : 1-2 mA
- tension d'accélération : 10 kV
- tension de focalisation : 1-2 kV

Selon les rendements de pulvérisation des divers composés (les oxydes en particulier ayant les plus faibles), la réalisation de dépôts dans la gamme d'épaisseur allant de $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ à $100 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ demande des durées allant de quelques minutes à quelques heures.

L'adaptation en boîte à gants est obtenue en dissociant les blocs de contrôle de la chambre de pulvérisation et du groupe de pompage. La boîte à gants est séparée en deux compartiments : l'un contenant la chambre à vide et l'autre le groupe de pompage. Lorsque les métaux sont pulvérisés la boîte est balayée par un gaz neutre (argon ou azote).

Des dépôts des isotopes des éléments suivants ont été préparés :

Th, Pa, U, Np, Pu, Am, Cm sous la forme d'oxydes
et Th, U, Pu, Am sous forme métallique.

En général, les dépôts obtenus à partir de métaux sont constitués d'oxydes. La réalisation de couches minces métalliques demande des précautions particulières quant à la pureté de l'atmosphère neutre en particulier pour le plutonium et les transplutoniens.

La caractérisation du degré d'oxydation peut être obtenue par spectroscopie d'électrons (ESCA). La vitesse de déposition est contrôlée en ligne soit par l'enregistrement du courant ionique soit par la technique du quartz oscillant.

Conclusion :

L'électropulvérisation et la pulvérisation par un faisceau d'ions apparaissent comme des techniques de dépositions complémentaires pour les actinides et en particulier dans le cas des isotopes rares pour lesquels des méthodes classiques telles que l'électrodéposition et l'évaporation sous vide sont inopérantes.

Références :

- (1) ZELENY J., Journal Phys. rev. 1917, 1.
- (2) LAUER K.F. - VERDINGH V., Nucl. Inst. and Meth., 1963, 21, 161