

CN8800994

CNIC--00082

IAE-0022

中国核科技报告

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT

同位素靶的制备技术



中國核情報中心

China Nuclear Information Centre

CNIC-00082

IAE-0022

同位素靶的制备技术

许国基 关守仁 罗兴华 孙树华

(中国原子能科学研究院, 北京)

中国核情报中心

北京·1987.12

摘 要

本文系统地介绍了同位素靶的制备技术, 主要内容包括核靶的制备手段(真空蒸发、聚焦重离子束溅射、滚轧、电镀、离心沉淀), 同位素化合物还原工艺(还原蒸馏、电解还原)和核靶的贮存方法(干燥法、抽真空法、低温干燥法)。

关键词 同位素靶 滚轧 电子轰击 还原蒸馏

TECHNIQUES FOR PREPARING ISOTOPIC TARGETS

Xu Guoji Guan Shouren Luo Xinghua Sun Shuhua

(Institute of Atomic Energy, Beijing)

ABSTRACT

This paper introduces the techniques of making isotopic targets for nuclear physics experiments. Vacuum evaporation, electroplating, centrifugal precipitation, rolling and focused heavy-ion beam sputtering used to prepare various isotopic targets at IAE are described. Reduction-distillation with active metals and electrolytic reduction for converting isotope oxides to metals are mentioned. The stripping processes of producing self-supporting isotopic targets are summarized. The store methods of metallic targets are given.

一、引言

用不同方法制备各种元素的核靶,是核物理实验中的一个十分重要的环节。随着核物理研究工作的不断深入以及高稳定性加速器和高分辨探测系统的发展,对浓缩同位素靶的需要越来越迫切。浓缩同位素的价格比天然材料贵得多,例如, ^{48}Ca 的单价是376美元/mg,而天然Ca为0.01美元/g,两者差3760万倍。由于同位素十分贵重,用少量材料制备同位素靶就成为制靶工作的关键技术。另外,多数金属同位素以化合物形式提供,而核测量工作总希望单核素靶,因此需要研究合适的方法将化合物还原成金属。

为满足核物理实验的需要,我们先后研制成聚焦重离子束溅射、滚轧和离心沉淀等制备同位素靶的新手段,并建立了一些同位素化合物的还原技术和同位素靶的贮存方法。

二、同位素靶的制备

1. 真空蒸发

用真空蒸发制备天然材料靶时,常用的蒸发源是小舟源和丝状源。这二种蒸发源的立体角大,材料利用率低。制备同位素靶时,必须使用立体角小的管型坩埚或小孔源^[1],以便节省同位素。管形坩埚的直径为2~5 mm,长度为10~20 mm。选择适当的蒸发距离,就能在较小的面积上获得所需厚度的沉积。

电阻加热法具有设备简单,操作方便,材料利用率较高等优点,但制备高熔点材料靶时,坩埚材料会给靶膜带来污染。为了克服这一困难,我们建立了EQD-3型电子轰击系统。EQD-3型电子枪(图1)由发射体组件、偏转磁场极靴、水冷坩埚及其换位机构、扫描电位器组件、电子、离子收集极及高、低压引入装置等几部分组成。该枪的最大功率为3 kW,束斑尺寸在 $\phi 3.5 \sim 8$ mm间连续可调,电子束可在x、y方向作二维移动。

我们用EQD-3型电子枪制备了Ta、W和Mo等高熔点材料靶,Gd、Yb和Er等稀土元素靶,Si-Y-Si、Si-Cr-Si等夹层膜以及V、Co、Fe等自支撑靶。

真空蒸发制备自撑靶时,需要使用脱膜剂,我们采用过的脱膜剂有NaCl、BaCl₂、CsI、洗涤剂,肥皂和甜菜硷等。实验表明,用NaCl、CsI等盐类脱膜剂所获得的靶膜表面平整,但往往含有少量杂质,用甜菜硷做脱膜剂时,核靶的纯度好,机械强度高,但表面不够平整。

2. 聚焦重离子束溅射

聚焦重离子束溅射^[2]制备核靶的基本原理是离子源产生的Ar⁺由引出电极引入高真空室,并被加速到能量为10 keV。通过调节单透镜的聚焦作用和离子源的放电状态,在坩埚处可获得束斑为 $\phi 1 \sim 2$ mm的离子束。高能离子束轰击靶材料,使其原子飞溅出来,并沉积在基衬上,形成一层均匀的靶膜。

跟真空蒸发相比,聚焦离子束溅射有几个突出的优点:

(1) 由于被溅射出的原子具有10 eV的平均能量和溅射在高真空中进行,靶膜的附着力和机械强度大为改善。

(2) 离子束既可小到 $\phi 1\text{ mm}$ 左右, 所以使用几毫克的材料就能做出靶来, 这特别适合同位素靶的制备。

(3) 跟热蒸发相比, 溅射沉积是一种冷过程, 阴极温度较低, 衬底至阴极的距离可小至 1 cm , 因此可获得较高的材料利用率。

(4) 聚焦溅射虽采用直流电源, 但也能用来沉积氧化物等绝缘材料。

我们建立了一台聚焦重离子溅射装置(图2), 它由离子源、单透镜、靶支架、阴极和真空系统等部分组成。经测量, 我们得到表1所示的溅射参数。

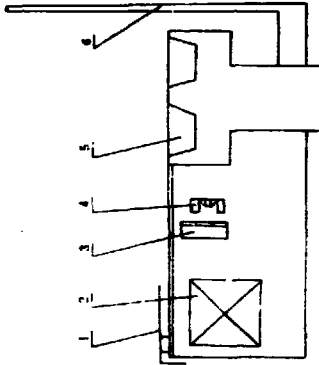


图1 EQD-3型电子枪结构

1—高离子收集极; 2—发射体组件; 3—磁体
4—水冷坩埚; 5—阳极; 6—二次电子收集极。

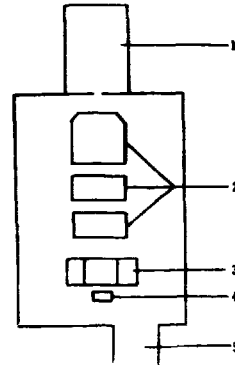


图2 聚焦重离子束溅射装置

1—离子源; 2—单透镜; 3—靶支架;
4—坩埚(阴极); 5—真空系统。

表1 溅射参数

离子种类	加速电压	聚焦电压	离子源气压	弧流	离子流
Ar^+	2~10kV	0.5~2kV	5~10Pa	2~3A	0.4~1mA

利用表1的溅射参数, 沉积了二十几种元素的有衬底靶(见表2)。

表2 有衬底靶

元素	靶材重量	溅出靶材	靶厚 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$	K	衬底至阴极距离 cm	衬底/厚度 μm
	mg	mg		$(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ mg		
Sc	25.1	8.1	216	26.6	2	C/0.1 Cu/20
Sc	202.9	19.9	179	9.02	3.5	C/0.1 Cu/20
Cr	132.4	13.4	137	10.2	3.5	Au/0.15 Al/50
Cr	49.7	17.6	541	30.6	2	Cu/20 Al/50
Mn	47.6	9.5	276	29.1	2	Cu/20 Al/50
Mn	68.7	27.6	222	8.04	3.5	C/0.10 Cu/20
Co	19.3	13.3	427	32.2	2	C/0.10 Cu/20
Ni	103.9	10.3	289	28.1	2	Cu/20 Al/50

表 2

元素	靶材重量	溅出靶材	靶厚	K	衬底至阴 极距离	衬底/厚度	
	mg	mg	$\mu\text{g}/\text{cm}^2$	$(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ mg		cm	μm
Ni	63.6	13.4	137	10.2	3.5	Au/0.1	Al/50
Cu	446.5	8.3	212	25.5	2	Au/0.1	Al/50
Cu	363.3	9.9	137	10.2	3.5	C/0.1	Al/50
Ge	119.0	6.7	223	33.3	2	C/0.1	Al/50
Ge	46.7	7.8	79	10.1	3.5	Au/0.1	Cu/20
Y	83.1	14.4	492	34.1	2	Au/0.1	Cu/20
Zr	80.1	16.2	542	33.4	2	C/0.1	Au/0.15
Nb	618.3	15.6	529	33.9	2	C/0.1	Au/0.15
Mo	287.9	3.5	112	31.9	2	Au/0.1	Al/50
Mo	240.8	5.4	61	11.2	3.5	Au/0.1	Al/50
Rh	136.1	30.5	351	11.5	3.5	C/0.1	Cu/20
Rh	179.9	14.0	409	29.2	2	C/0.1	Cu/20
Pd	31.5	11.9	336	28.1	2	Au/0.2	Al/50
Pd	89.2	49.1	470	9.6	3.5	Au/0.2	Al/50
Ag	102.4	24.2	235	9.7	3.5	C/0.2	Cu/20
Ag	361.2	12.6	310	24.6	2	C/0.2	Cu/20
In	431.8	3.7	121	32.3	2	Cu/20	Al/50
Sn	217.4	12.4	399	32.3	2	Cu/20	Al/50
Gd	408.3	11.6	371	32.0	2	C/0.2	Al/50
Gd	317.6	14.8	159	10.7	3.5	C/0.2	Al/50
Er	41.7	11.8	127	10.8	3.5	C/0.1	Cu/20
Er	33.2	25.5	769	30.1	2	Au/0.2	Cu/20
Hf	220.4	14.0	468	33.3	2	C/0.1	Cu/20
Ta	452.3	11.4	351	30.8	2	Cu/20	Al/50
W	623.1	38.8	1131	29.1	2	Cu/20	Al/50
W	421.2	11.8	111	9.4	3.5	Au/0.2	Al/50
Re	707.0	18.2	505	27.7	2	Cu/20	Al/60
Ir	557.6	5.9	160	27.0	2	Cu/20	Al/50
Ir	571.6	8.3	49	9.76	3.5	Au/0.1	Al/50
Pt	202.9	19.9	179	9.0	3.5	Au/0.1	Al/50
Pt	217.7	14.8	400	27.0	2	Cu/20	Al/50
Au	162.5	18.7	158	8.5	3.5	C/0.1	Cu/20
Au	173.1	15.5	380	24.5	2	C/0.1	Cu/20
Pb	416.7	24.2	241	9.9	3.5	Au/0.2	Al/50
Pb	354.1	13.6	358	26.2	2	Au/0.2	Al/50

表中, $K = \text{靶厚}/\text{溅出靶材质量}$, 即每消耗 1 毫克材料所获的靶的厚度。测得 K 值, 就能求出沉积某一厚度靶膜所需的最少材料量, 这对实际操作是十分有用的。

3. 溅射

溅射⁽⁸⁾是制备 $> 1 \text{ mg}/\text{cm}^2$ 金属靶的十分有用的方法, 其优点是节省同位素, 靶的制备

过程中引入的杂质可忽略, 靶的机械强度高。我们在1982年引进一台B85/120型滚轧机, 开展了滚轧制靶的研究工作。

滚轧制靶跟工业上的轧制技术的主要区别是靶材料不直接接触轧辊, 而是放在夹片中通过轧机。一般金属轧制都采用不锈钢夹片, 对于In、Sn等软金属, 则使用聚四氟乙烯夹片。

Au、Al、Ag、Cu和Mg等硬度较小的金属轧至 $10\mu\text{m}$ 左右时, 容易粘连夹片。如果用医用注射器在膜层和夹片间点几滴乙醇, 然后轧制, 就能有效地防止粘连。

W、Mo、Co和Rh等脆性材料, 必须进行中间退火, 才能轧到膜层小于 $2\mu\text{m}$ 。退火温度、退火时间和保温时间、退火次数等工艺参数, 一般由实验确定。

Sc、Er、Ti、Y和Gd等金属膜在轧制和称重过程中, 易着火烧毁。其原因是在滚轧过程中, 薄膜因摩擦而积累电荷, 它们在适当的条件下迅速释放并产生火花, 将薄膜烧毁。如果让膜层中的电荷随时泄放掉, 就能防止着火。我们采用的具体措施是在轧制上述金属时使用金属夹片, 而不用绝缘材料夹片; 在裁剪和称重薄膜时, 手腕上结接地导电带。

我们轧制了三十几种金属膜, 结果列于表3中。

表3 轧制样品

材料	初始厚度, μm	最终厚度, mg/cm^2	夹片
Mg	100	0.41	st. s, F_4
^{27}Al	40	0.42	st. s, F_4
^{45}Sc	300	0.21	st. s
Ti	400	0.29	st. s
V	300	0.28	st. s
^{59}Co	310	2.1	st. s
Ni	100	0.30	st. s
^{63}Cu	粒, 165	0.62	st. s
Cd	700	2.5	st. s, F_4
Zn	粒, 200	1.20	st. s, F_4
^{89}Y	块	0.36	st. s
Er	屑	0.50	st. s
Zr	500	0.25	st. s
^{93}Nb	510	0.40	st. s
Mo	520	0.71	st. s
^{103}Rh	105	3.81	st. s
Pd	600	0.70	st. s
^{109}Ag	粒	2.01	st. s
In	600	7.1	st. s, F_4
^{116}Sn	粒, 200	1.54	st. s, F_4
Hf	2000	$50\mu\text{m}$	st. s
Ta	65	0.40	st. s
W	100	$15\mu\text{m}$	st. s
Re	1000	$50\mu\text{m}$	st. s
Pt	200	1.6	st. s
^{197}Au	50	3.1	st. s, F_4

表3

材料	初始厚度, μm	最终厚度, mg/cm^2	夹片
Pb	300	5.5	st.s, F ₄
¹⁵² Gd	200	0.61	st.s
²⁰⁹ Bi	粒	12	st.s
¹⁴⁸ Sm	块	1.1	st.s
Ag-Pd	100	2.71	st.s
Au-Pd	400	1.73	st.s
Ta-Nb	100	1.23	st.s
Al-Zn	1000	2.47	st.s

表中st.s为不锈钢, F₄为聚四氟乙烯。

4. 电镀

电镀是一种经典的制靶方法, 其优点是设备简单, 初始用料少, 材料利用率高(大于40%), 能制备1~20 mg/cm^2 的厚靶。但电镀靶的均匀性差, 杂质含量也较高, 而且只有部分材料能配制电镀液, 因此电镀只能作为制备核靶的一种补充方法。我们用该方法制备了几种同位素靶, 结果如表4所示。

表4 电镀靶

	⁶⁰ Ni	⁵⁹ Fe	⁶³ Cu	⁶⁴ Zn
厚度, mg/cm^2	0.3~10	0.6~2	1~2.2	1.7~2.6
材料利用率, %	92	92	45	40
电流密度, mA/cm^2	4	25	8	4
温度, $^{\circ}\text{C}$	50	25	25	20
电极距离, cm	2.3	3	2.4	4
pH	2.1	7	0.6~0.8	4.2
阴极	不锈钢	Cu	不锈钢	Al

5. 离心沉淀

离心沉淀^[4]制备核靶的原理是在特定的悬浮液中, 粉末材料和悬浮剂的密度不一样, 在离心力的作用下, 将其分开, 并沉淀在靶衬上。其优点是材料利用率高(>90%), 设备简单。它的缺点是只能制备粉末材料靶, 靶的均匀性和机械强度都较差。我们用该法为在束 γ 谱学实验制备一些同位素靶(表5)。

表5 离心靶

	¹³⁰ TeO ₂	¹³⁰ TeO ₂	¹⁵⁹ Tb ₂ O ₃	¹⁶⁰ Dy ₂ O ₃	¹⁶¹ Dy ₂ O ₃
厚度, mg/cm^2	5~7	3~5	5~8	3~4	8~12
靶衬, μm	Au/10	Mylar/7	Mylar/9	Au/8	Mylar/5

三、同位素化合物的还原

国产或进口的浓缩金属同位素一般以化合物形式提供，因金属比较容易跟别的元素发生化学反应。为了用真空蒸发、滚轧和煮焦重离子轰射等方法制备金属同位素靶，首先要将化合物还原成金属。为此，我们建立了还原蒸馏和电解还原两种还原技术。

1. 还原蒸馏

还原蒸馏^[1]的基本过程是在高温和高真空下，金属氧化物和活泼金属（还原剂）起反应，金属同位素被还原并从坩埚中蒸发出来。

La、Zr、Ti、Th和Hf等活泼金属常用作还原剂。将新鲜的、粉末状的还原剂按一定的比例与金属氧化物均匀混合，压成小片，装入Ta或C坩埚中。在真空室中，用电子轰击法或电阻加热法将坩埚加热至还原温度，金属同位素迅速蒸发并冷凝在水冷收集板上。我们用此法已将CaO、MgO、Sm₂O₃、Yb₂O₃和Nd₂O₃等同位素氧化物还原成金属。

2. 电解还原

电解还原主要适用于Cu、Zn和Cd等元素，其电解条件见表6。

表6 电解条件

元素	电 解 液		电 解 条 件			材料利用率
	成 分	数 量	电流密度	阴极	pH	
Zn	ZnO	50~100mg	$\frac{60 \text{ mA}}{\text{cm}^2}$	白金片	3.5	90%
	0.5mol/L H ₂ SO ₄	5ml				
	5% NaOH	0.1ml				
Cd	96%乙酸	0.1ml	$\frac{125 \text{ mA}}{\text{cm}^2}$	铜片	2~4	91%
	CdO	50~100mg				
Cu	0.5mol/L H ₂ SO ₄	5ml	$\frac{200 \text{ mA}}{\text{cm}^2}$	铜片	1	90%
	5mol/L H ₂ SO ₄	5ml				

具体还原过程是将表中的电解液成分倒入小型白金坩埚中，放在磁力搅拌器上边加热边搅拌。待氧化物全部溶解后，插入阴极，接通电源，调节好电流密度。电解十分钟后，取出阴极，将金属粉末从阴极上刮下来。然后继续电解，第二次刮下金属粉末，如此反复多次，直至全部金属从电解液中还原出来。电解装置如图3所示。

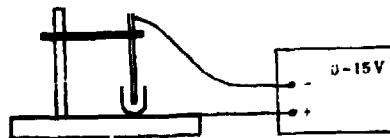


图3 电解还原装置

四、同位素靶的贮存

1. 干燥法

对于化学性质稳定的同位素靶和已开封的金属同位素，可存放在装有干燥剂的干燥皿中，只要定期更换干燥剂，同位素靶可以保存几个月而不发生明显变化。

2. 低温干燥法

Ca、Li、Sr、La和Nd等活泼金属同位素靶，先装入充氦气的干燥皿中，然后将干燥皿放进冰箱的冷冻室。上述活泼金属在低温干燥气氛中能保持一年以上。

3. 抽真空法

Ca、Li和Mg等同位素靶制备好后，需从制靶实验室传递到加速器靶室或带到另一单位去使用。为防止氧化，先在氦气中将同位素靶装入密封容器，接着抽真空，然后将整个容器传送到用户。

参 考 文 献

- [1] J.M. Heagney, *Nucl. Instr. and Meth.* 102 (1972) 451
- [2] G. Sletten, et al., *ibid* 102 (1972) 459
- [3] K.M. Glover, et al., *ibid* 102 (1972) 443
- [4] I. Sugi, *ibid* 145 (1977) 409
- [5] J.M. Heagney, et al., LA-6850-C P32

CHINA NUCLEAR SCIENCE & TECHNOLOGY REPORT



P.O. Box 2103
Beijing, China

China Nuclear Information Centre