

07;11;12

## Экспериментальное исследование стабильности и отражательных свойств тонких пленок на основе обедненного урана для длины волны 4.5 nm

© В.А. Пронин, Д.А. Вихляев, О.Н. Гилев, А.Л. Запысов, А.В. Липин,  
В.И. Осташев, А.В. Потапов, И.Л. Святов

Российский федеральный ядерный центр — Всероссийский научно-исследовательский институт технической физики им. акад. Е.И. Забабахина (РФЯЦ-ВНИИТФ),  
 456770 Снежинск, Челябинская область, Россия  
 e-mail: dep5@vniitf.ru

(Поступило в Редакцию 1 августа 2007 г.  
 В окончательной редакции 12 февраля 2008 г.)

Представлены результаты разработки технологии тонких пленок на основе обедненного урана, которые могут быть использованы в качестве высокоотражающих рентгеновских зеркал на длине волны 4.5 nm. Коэффициенты отражения рентгеновского излучения зеркал на основе урановых пленок находятся в пределах 90–10% при углах скольжения 1–10°.

Исследована стабильность коэффициента отражения пленок толщиной 200 Å из обедненного урана с защитным слоем углерода 100, 200 Å и пленок на основе уран–никель толщиной 200 Å с содержанием никеля 9 и 23 mass%. Изготовлено высокоотражающее зеркало, которое используется для увеличения интенсивности рентгеновского излучения в рентгеновском калибровочном комплексе РКК-1-100. Даны рекомендации по изготовлению рентгеновских зеркал на основе пленок из обедненного урана.

PACS: 07.60.-j; 07.85.-m, 07.85.Fv

### Введение

Согласно расчетам [1], обедненный уран является перспективным материалом для использования в качестве зеркального покрытия в области мягкого рентгеновского излучения. Он обладает высокой поляризуемостью и одновременно низким поглощением в интервале длин волн 3–6 nm. Оптические свойства зеркал на основе урана подробно изучаются с начала 1990-х гг. различными исследовательскими лабораториями [2–4].

В работе [3] рассматривается использование тонких пленок на основе обедненного урана в качестве высокоотражающих зеркал для астрофизических применений и синхротронных исследований. Отмечается, что природный уран является чрезвычайно химически активным металлом и быстро окисляется в атмосфере — примерно 13 nm в день. Наличие кислорода в урановых пленках резко уменьшает их коэффициент отражения. Поэтому основной проблемой являются получение бескислородных урановых пленок и их сохранность при эксплуатации в воздушной атмосфере.

В исследовательских лабораториях, представленных в работе [3], для уменьшения скорости окисления урана в атмосфере высокоотражающие зеркала изготавливали с защитой урановых пленок слоем углерода либо на основе химически пассивного соединения уран–никель. Подробно представлены характеристики зеркал на основе пленок уран–никель с содержанием никеля порядка 25 mass% и зеркал из урановых пленок толщиной 200 Å с защитой слоями углерода 100 и 200 Å.

Однако в работе не рассматривается вопрос о стабильности коэффициентов отражения в течение длительной эксплуатации таких зеркал в атмосфере. Все зеркала в этой исследовательской лаборатории были изготовлены методом магнетронного распыления.

Известен метод получения высококачественных пленок с плотной кристаллической структурой пленок с малыми загрязнениями: метод магнетронного распыления в режиме ионного осаждения [5]. Использование такого способа позволит получить урановые пленки с малыми загрязнениями остаточными газами, особенно кислородом, и высокими эксплуатационными характеристиками [6].

Целью настоящей работы является исследование стабильности и отражающих свойств тонких пленок, полученных методом магнетронного распыления в режиме ионного осаждения.

### 1. Схема эксперимента

Для исследования отражательных характеристик зеркал на основе обедненного урана в области мягкого рентгеновского излучения использовались установки КРУС-УКРОП и РКК-1-100. Экспериментальная схема установки КРУС-УКРОП [7] представлена на рис. 1.

Рентгеновская трубка (1) с углеродным анодом служит источником излучения. Для выделения квазимонохроматического участка спектра, содержащего характеристическую линию углерода  $K_\alpha$  с энергией  $E = 277$  eV ( $\lambda = 4.5$  nm) и часть тормозного спектра со средней

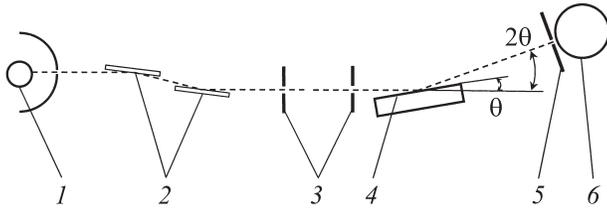


Рис. 1. Схема измерений.

энергией квантов, близкой к энергии характеристической линии, применяется селективный фильтр и два зеркала (2) полного внешнего отражения (ПВО). Селективным фильтром служит входное окно счетчика Гейгера (6), изготовленное из лавсановой пленки толщиной  $1.5 \mu\text{m}$ . Основное назначение зеркал ПВО — эффективное подавление высокоэнергетической части спектра, с энергиями квантов выше К-скачка углерода поглощения селективного фильтра. Зеркала ПВО изготавливались из стекла К8, угол падения излучения на зеркало составлял  $80 \text{ mrad}$ .

Щелевые диафрагмы (3) формируют рентгеновский пучок ленточной формы, сечением  $0.1 \times 8.0 \text{ mm}$  и расходимостью  $< 10^{-3} \text{ rad}$ . Кривая отражения измерялась с широкой щелью (5) счетчика (угловая ширина  $\delta\theta = 0.36^\circ$ ), что обеспечивало максимальный сбор всего излучения — зеркально отраженного и рассеянного. В этом случае значение полного коэффициента отражения  $R_\Sigma$  было максимально близким к определяемому по формуле Френеля. Эксперименты по определению коэффициента отражения  $R$  зеркал (4) от угла скольжения выполнялись по традиционной схеме  $(\theta-2\theta)$  геометрии.

Измерения плотности потока рентгеновских квантов проводились с помощью счетчика Гейгера, заполненного смесью газов (30% Ag + 70% CH<sub>4</sub>).

## 2. Приготовление образцов

В связи с высокой химической активностью урана и его быстрым окислением даже в вакуумной камере установки для напыления существуют технологические проблемы изготовления тонких урановых слоев. В работе [3] высокоотражающие рентгеновские зеркала на основе соединения урана были изготовлены методом магнетронного распыления. Нами был предложен и реализован метод магнетронного распыления в режиме ионного осаждения [5]. Такой метод позволяет получать менее загрязненные остаточными газами пленки с высокими адгезионными и эксплуатационными свойствами. Отличие данного метода заключается в том, что к образцу подводится отрицательное напряжение смещения. От величины электрического смещения зависит качество пленок, загрязненность их остаточными газами, и, как правило, для каждого материала выбирают оптимальную величину напряжения смещения [6]. В экспериментах при изготовлении пленок из урана-никеля подавалось —

75 V, пленок из урана — 85 V, пленок из графита — 90 V. Распыление пленок проводилось в атмосфере аргона высокой чистоты при давлении  $\sim 10^{-2} \text{ Torr}$  на подложки из полированного кварца. При этом шероховатость поверхности подложки составляла  $5-7 \text{ \AA}$ . В качестве мишеней для распыления использовались высокоплотный графит высокой чистоты и обедненный уран в виде дисков диаметром 100 и толщиной 4 mm.

В процессе работы для получения стабильности характеристик изготовлены пленки из обедненного урана толщиной  $200 \text{ \AA}$ , защищенные слоями углерода толщиной 100 и  $200 \text{ \AA}$ , и пленки на основе соединений уран-никель толщиной  $200 \text{ \AA}$  с содержанием никеля 9 и 23 mass%.

Кроме того, были изготовлены уран-никелевые пленки толщиной 800, 2000 и  $2300 \text{ \AA}$  с двумя значениями концентраций никеля в урановой пленке  $\sim 9$ ,  $\sim 24 \text{ mass\%}$ . Концентрация никеля в урановой пленке регулировалась путем прикрывания мишени магнетроном из обедненного урана кусочками никеля различной площади, так же как это делалось в работе [3].

## 3. Измерение стабильности урановых зеркал с защитным слоем углерода и зеркал на основе уран-никелевых пленок

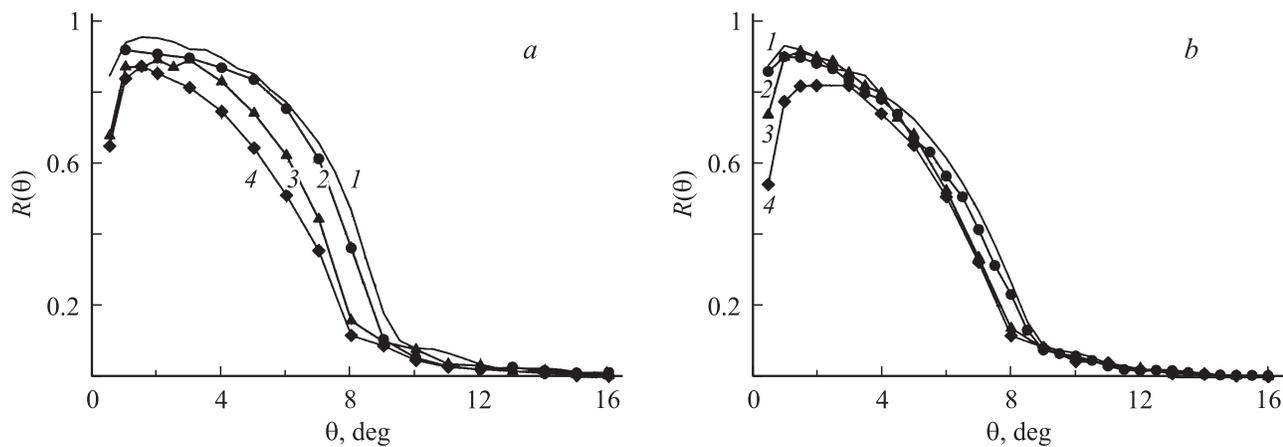
Изучение стабильности зеркал проводилось путем измерения коэффициента отражения рентгеновского излучения на длине волны  $4.5 \text{ nm}$  в зависимости от времени эксплуатации зеркал в атмосфере воздуха в лабораторных условиях. При этом измеряли угловую зависимость коэффициента отражения зеркал сразу же после изготовления ( $\sim 10 \text{ min}$ ), через 60 min, затем через сутки и далее в течение 12 месяцев. Использовали образцы, полученные, как указано выше.

На рис. 2 представлены зависимости коэффициента отражения от угла падения рентгеновского излучения для урановых пленок, защищенных слоем углерода 100 и  $200 \text{ \AA}$ .

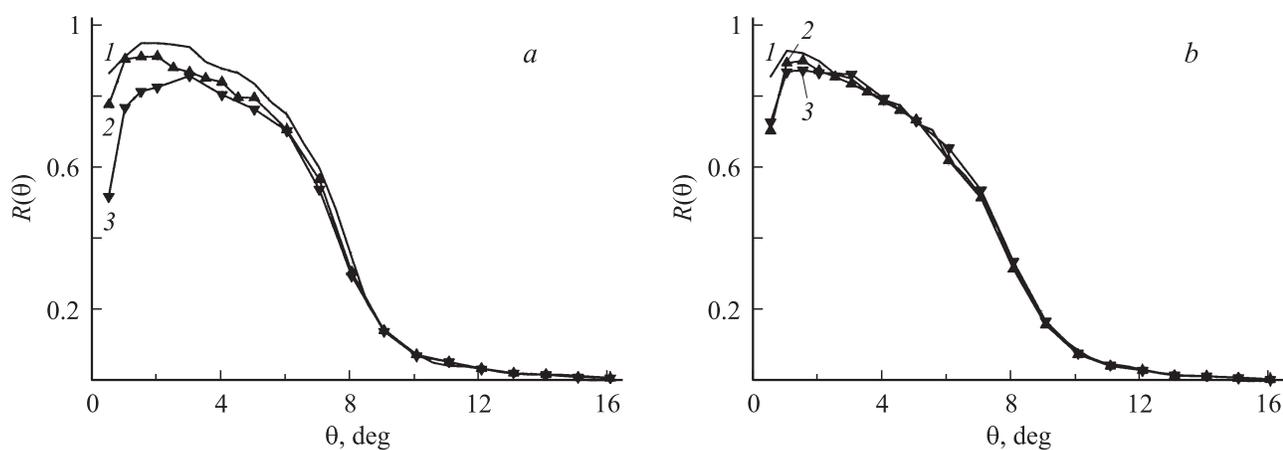
На рис. 3 представлены аналогичные характеристики для пленок на основе уран-никель. Из графиков видно, что пленки, защищенные слоем углерода толщиной  $100 \text{ \AA}$ , нестабильны, особенно в интервале углов  $6-16^\circ$ . Наилучшую стабильность имеют пленки на основе уран-никель с содержанием никеля 23 mass%.

## Результаты

В табл. 1 приведены значения коэффициентов отражения ( $R$ , %) в зависимости от угла скольжения ( $\theta^\circ$ ) образцов урановых пленок, защищенных углеродом, и пленок на основе уран-никель при эксплуатации их в атмосфере в течение одного и двенадцати месяцев. Табл. 1 наглядно демонстрирует возможность эксплуатации зеркал в



**Рис. 2.** Коэффициент отражения U-C зеркал при различном времени выдержки на воздухе: а) U — 200, C — 100 Å; б) U — 200, C — 200 Å. 1 — 10 min; 2 — 1; 3 — 8; 4 — 12 месяцев.



**Рис. 3.** Коэффициент отражения U-Ni зеркал при различном времени выдержки на воздухе: а) UNi — 200 Å, Ni — 9 mass%; б) UNi — 200 Å, Ni — 23 mass%; 1 — 60 min; 2 — 4; 3 — 8 месяцев.

**Таблица 1.**

θ, deg	Время	U-200 Å C-100 Å	U-200 Å C-200 Å	UNi-200 Å (Ni 9 mass%)	UNi-200 Å (Ni 23 mass%)
2	1 month	86.1	92	86.9	93.1
	1 year	85.8	92.1	86	92.9
4	1 month	75	79	78.2	84.4
	1 year	73.1	79.2	78.3	84.2
6	1 month	56	58	62	77
	1 year	55.9	56.2	60.5	75.2
8	1 month	22	23	34.9	31.6
	1 year	16	18	32	30.1
10	1 month	4.4	4.5	6.9	7.9
	1 year	4.55	4.3	6.8	7.8

Таблица 2. Состав пленок на основе уран–никель

№ образца	$L, \text{Å}$	$\text{CO}_2, \text{mass}\%$	$\text{C}_{\text{Ni}}, \text{mass}\%$	$\text{C}_{\text{U}}, \text{mass}\%$
1	800	3.6	9	87.4
2	2000	3	9.2	87.8
3	2300	1	24.7	74.3

Таблица 3.

№ образца		$\Theta, \text{deg}$										
		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
1		87.3	89	85.6	82.6	78.2	70	58.6	39.5	14	6.3	4.2
2	$R, \%$	81.4	86.3	84	82.1	77.5	70.2	57.9	38.5	12.5	7.2	4.9
3		89.2	89.2	86	80.5	75.8	67.8	56.6	41.5	23.1	11.2	5.6

воздушной атмосфере. В табл. 2, 3 приведены состав пленок на основе уран–никель толщиной 800, 2000, 2300 Å и значения коэффициента отражения ( $R, \%$ ) от угла скольжения ( $\theta^\circ$ ). Исследования состава и структуры напыленных пленок проводились на растровом электронном микроскопе JSM-6460LW с приставкой для микроанализа.

Образец № 3 изготовлен на полированной кварцевой пластине  $20 \times 60 \times 4 \text{ mm}$ . Такое зеркало используется в установке РКК-1-100 для увеличения интенсивности рентгеновского излучения.

## Заключение

В заключение кратко сформулируем основные результаты и достижения.

Отработаны процессы изготовления пленок из обедненного урана с защитными слоями углерода и пленок на основе уран–никель путем магнетронного распыления в режиме ионного осаждения.

Измерены коэффициенты отражения рентгеновского излучения урановых пленок толщиной 200–2300 Å. Коэффициенты отражения зеркал на основе таких пленок находятся в пределах 90–10% при углах скольжения  $1–10^\circ$  на длине волны 4.5 nm.

Исследована стабильность коэффициента отражения пленок толщиной 200 Å из обедненного урана с защитным слоем углерода 100 и 200 Å и пленок из урана–никеля толщиной 200 Å с содержанием никеля 9 и 23 mass%. Наилучшую стабильность коэффициента отражения при эксплуатации в течение года в атмосфере воздуха имеют зеркала из пленок уран–никель с содержанием 23 mass%.

Изготовлено зеркало на кварцевой пластине  $60 \times 20 \times 4 \text{ mm}$  с коэффициентом отражения 89.2–11.2% при углах скольжения  $1–10^\circ$  на длине

волны 4.5 nm, которое используется в рентгеновском калибровочном комплексе РКК-1-100 для увеличения интенсивности рентгеновского излучения.

Рекомендуется изготавливать однослойные зеркала на основе уран–никель с содержанием никеля до 25 mass% толщиной 2300 Å, так как в этом случае получаются пленки с наименьшей концентрацией кислорода (порядка 1 mass%) при коэффициентах отражения 10–90%.

Многослойные рентгеновские зеркала могут быть изготовлены на основе пленок уран–никель с содержанием никеля 9–25 mass%, либо на основе уран–углерод толщиной менее 200 Å.

## Список литературы

- [1] *Artioukov I.A., Fechtchenko R.M., Udovskii A.L., Uspenskii Y.A., Vinogradov A.V.* // Nucl. Instr. Meth. A. 2004. Vol. 517. P. 372.
- [2] *Oliphant D.* Characterization of Uranium, Uranium Oxide and Silicon Multilayer Films. BYU, Provo, 2000. P. 63.
- [3] *Allred D.D. et al.* // Proc. SPIE. 2000. Vol. 4782. P. 212–223.
- [4] *Artioukov I.A., Fechtchenko R.M., Vinogradov A.V., Sagitov S.I., Vikhlyayev D.A., Lipin A.V., Ostashev V.I., Pronin A.V.* // Conf. on X-ray Optics and Microanalysis ICXOM-XVIII. Frascati, Roma. September 25–30, 2005. Book of Program & Abstracts. P. 64.
- [5] *Ивановский Г.Ф., Петров В.И.* Ионно-плазменная обработка материалов. М.: Радио и связь, 1986. 232 с.
- [6] *Мак Кланакан Э.Д., Легрей Н.В.* // Распыление под действием бомбардировки частицами. Ч. III / Под ред. Р. Бернса и К. Витмака. М.: Мир, 1998. 552 с.
- [7] *Запысов А.Л., Израилев И.М., Никитин В.П.* и др. // Диагностика плазмы. Сб. ст. Вып. 6 / Под ред. М.И. Пергамента. М.: Энергоатомиздат, 1989. С. 47.