

利用伴随 α 粒子能谱分析固体氚靶中 氚浓度深度分布

祝庆军¹, 鲍杰², 恽财峰³, 朱通华³, 高芳芳¹, 李佳^{4,*}, 刘松林¹

(1. 中国科学院等离子体物理研究所, 安徽 合肥 230031; 2. 中国原子能科学研究院核物理研究所, 北京 102413;

3. 中国工程物理研究院核物理与化学研究所, 四川 绵阳 621900;

4. 中国科学技术大学核科学技术学院, 安徽 合肥 230027)

摘要: 在目前的氘氚中子发生器源中子分析过程中, 固体氚靶中氚浓度深度分布信息的缺失是普遍遇到的问题。为解决此问题, 本文建立了利用伴随粒子能谱反演氚浓度深度分布的模型, 采用来自氚钛靶的 α 实验能谱作为模型测试对象, 通过该模型获得了氚钛靶中氚浓度深度分布的数据。结果表明, 氚浓度随氚钛靶深度的增加呈双峰趋势, 两峰之间的氚浓度波谷位于靶中 $0.94 \mu\text{m}$ 处, 该深度正是入射氚粒子的射程极限。所得的氚浓度深度分布趋势与其他实验方法测量结果相符, 表明该模型能为氘氚中子发生器的源中子分析提供即时的氚浓度深度分布信息。

关键词: 氚浓度深度分布; 伴随粒子法; α 能谱; 氘氚中子发生器

中图分类号: O571.42.2; TL8 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-6931(2016)09-1544-06

doi: 10.7538/yzk.2016.50.09.1544

Depth Profile of Tritium Concentration in Solid Tritium Target Using Associated Alpha Particle Spectrum

ZHU Qing-jun¹, BAO Jie², LAI Cai-feng³, ZHU Tong-hua³,
GAO Fang-fang¹, LI Jia^{4,*}, LIU Song-lin¹

(1. Institute of Plasma Physics, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China;

2. Department of Nuclear Physics, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China;

3. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics,
Mianyang 621900, China; 4. School of Nuclear Science and Technology,
University of Science and Technology of China, Hefei 230027, China)

Abstract: Currently in the analysis of source neutron of D-T neutron generator, the lack of the information of the depth profile of tritium concentration in solid tritide target is a common problem. To overcome this problem, a inversion model to study the depth profile of tritium concentration in the source target using the associated alpha spectrum was built, the reported alpha spectrum from $T(d, n)^4\text{He}$ reaction was used as a test input

for the model, and the depth profile of tritium concentration in titanium tritide target was acquired. The results show that the depth profile of the tritium concentration in the titanium tritide target presents bimodal distribution, and the tritium concentration bottom between two peaks locates at $0.94 \mu\text{m}$ of target thickness, which is the range limit of the inject deuterium ions. The similar trend was found in the available research using others techniques. The presented method can provide real-time depth profile of tritium concentration to source neutron analysis of the D-T neutron generator.

Key words: depth profile of tritium concentration; associated particle method; alpha spectrum; D-T neutron generator

氘氚中子发生器是进行中子科学研究的重要实验平台,其基本原理是将氘粒子加速后轰击氚靶,通过 $T(d,n)^4\text{He}$ 反应产生中子,所产生的中子品质,即源中子信息,是氘氚中子发生器实验平台重要的基础数据。鉴于源中子信息的重要性,开发了诸如 EnergySetprogram^[1]、NeuSDes^[2]、Drosg2000^[3]、TARGET^[4]、FNG 等源中子计算程序^[5-7]。中国原子能科学研究院于 20 世纪 70 年代编写了加速器单能中子源相关数据手册^[8],兰州大学针对其实验室的氘氚中子发生器建立了源中子分析模型^[9-10]。氚浓度深度分布数据是这些源中子程序的必需数据,但由于测量困难,氚靶中的氚浓度深度分布通常假设为平均分布,这无疑将给源中子分析结果引入不确定性,从而影响后续的中子物理实验的结果分析。因此,获取氚靶中氚浓度深度分布对提高中子物理实验结果分析水平非常重要。

氚靶制成功后,一般每个吸附材料原子获得 1~2 个氚原子^[11],但氚在靶中实际分布并非完全均匀^[12],准确的分布需通过专门的实验测量才能获取。目前已报道的实验测量方法有中子飞行时间测量^[13-14]、粒子背散射法^[15]、显影^[16]等。由于氚靶对于氘氚中子源的使用是耗材,因此目前测量方法显然成本过高。另外,随着氘粒子不断轰击氚靶,氚靶中氚浓度深度分布是动态变化的^[17-18],由于现有的测量方法是离线式测量,所获取的数据无法与氘氚中子发生器实验同步。因此,本文提出一种与氘氚中子发生器实验同步的氚靶中氚浓度深度分布测量方法。

1 利用伴随 α 粒子能谱反演氚浓度深度分布的原理

氘氚中子发生器通过如下核反应产生源中子:



在上述核反应中,靶产生一个中子的同时伴随发射一个 ${}^4\text{He}$ 核,反应产生的中子与 α 粒子之间存在一一对应的关系,即若已知入射氚核的能量和方向,并测定一定立体角内出射的伴随 α 粒子数,根据反应运动学即可得到相应立体角内出射的中子数,因此通过伴随粒子法系统可较准确地测定中子源强度。在氘氚中子发生器实验平台中,伴随粒子法系统是常见设备,且其与氘氚中子发生器实验同步,因此若能使用伴随粒子法系统的测量数据获取氚靶中氚的浓度深度分布,将会降低氚浓度深度分布的测量成本,更重要的是还能得到与氘氚中子发生器实验同步的氚浓度深度分布数据。利用伴随 α 粒子能谱分析氚浓度深度分布的关键在于建立氚浓度深度分布与 α 粒子能谱之间的物理关系。

测量系统如图 1 所示。以氘粒子运动方向作为参考方向,氚靶与参考方向的夹角为 β ,伴随粒子管道与参考方向的夹角为 φ ,将氚靶沿参考方向分为多层,每层靶中氚的密度信息即为氚的浓度深度分布信息,每层氚靶以 φ 角度出射初始 α 粒子,这些初始 α 粒子到达伴随粒子探测器时的能量和强度信息即为探测所得的

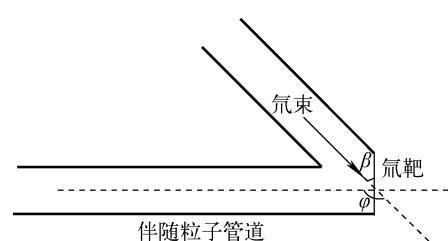


图 1 伴随粒子测量系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of associated particle measurement system

α 粒子能谱信息。

1) α 能谱中的能量信息 E_i

通过以下核反应运动学公式,可计算出第 i 层靶以 φ 角度出射的 α 粒子的初始能量 $E_{\alpha i}$:

$$E_{\alpha i} = \frac{m_D m_\alpha}{(m_\alpha + m_n)^2} E_{D i} \left[\cos \varphi + \sqrt{\cos^2 \varphi + \frac{m_n + m_\alpha}{m_D m_\alpha} \left(m_n - m_D + \frac{Q}{E_{D i}} m_n \right)} \right]^2 \quad (1)$$

式中: m_D 、 m_α 和 m_n 分别为氘粒子质量、 α 粒子质量和中子质量, a. u; Q 为 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应能, MeV; $E_{D i}$ 为第 i 层中氘粒子的能量, MeV; φ 为伴随粒子管道与氘粒子运动方向的夹角。第 i 层产生的初始能量为 $E_{\alpha i}$ 的 α 粒子需在靶中穿过路程 H_i 才能到达靶的表面:

$$H_i = \sum_1^{i-1} d_i / \sin(\varphi - \beta) \quad (2)$$

式中: d_i 为第 i 层靶的厚度, μm ; φ 为伴随粒子管道与氘粒子运动方向的夹角; β 为氚靶与氘粒子运动方向的夹角。另外伴随粒子法通常在金硅面垒探测器(SSD)前放置铝箔以防止散射的氘粒子产生干扰信号,因此 α 粒子穿越铝箔时也会损失能量。采用 SRIM^[19] 计算 α 粒子在以上穿越过程中的能量损失 E_{Si} , 第 i 层靶中出射的 α 粒子达到 SSD 时的能量 E_i 采用下式计算:

$$E_i = E_{\alpha i} - E_{Si} \quad (3)$$

2) α 能谱中强度信息 P_i

第 i 层靶中 φ 方向出射 α 粒子的粒子数

P_i 为:

$$P_i = d_i C_i \delta_a(E_{D i}, \varphi) \Omega I_D \quad (4)$$

式中: d_i 为第 i 层靶的厚度, cm ; C_i 为第 i 层的氚原子数密度, cm^{-3} ; $\delta_a(E_{D i}, \varphi)$ 为能量为 $E_{D i}$ 的氘粒子通过 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应在 φ 角附近出射 α 粒子的截面, cm^2/sr ; Ω 为伴随粒子法探测器对 α 粒子的探测立体角, sr ; I_D 为到达靶的氘粒子数。根据已公布的 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应微分截面数据, $\delta_a(E_{D i}, \varphi)$ 可通过关联中子的微分截面 $\delta_n(E_{D i}, \theta_i)$ 获得:

$$\delta_n(E_{D i}, \theta_i) \sin \theta_i = \delta_a(E_{D i}, \varphi) \sin \varphi \quad (5)$$

式中: θ_i 为第 i 层氚靶以 φ 角度出射 α 粒子所关联中子的出射角度, θ_i 可根据 $E_{D i}$ 通过核反应运动学计算获得; $\delta_n(E_{D i}, \theta_i)$ 为能量为 $E_{D i}$ 的氘粒子通过 $T(d, n)^4\text{He}$ 反应在 θ_i 方向出射中子的微分截面, 即关联中子的微分截面, 可根据 $E_{D i}$ 、 θ_i 通过核数据库获得。通常从核数据库中所得截面数据和角度为质心系, 式(5)计算时已将相关数据从质心系转为实验室系。

根据以上分析, 利用伴随 α 粒子能谱分析氚浓度深度分布的基本步骤是首先计算出 α 粒子能量信息 E_i , 再根据 E_i 和实验测量的 α 粒子能谱, 获取能量为 E_i 的 α 粒子强度 P_i , 将其代入式(4), 其中 P_i 、 d_i 、 $\delta_a(E_{D i}, \varphi)$ 均为已知量, 且实验条件参数 Ω 和 I_D 通常已知, 第 i 层靶中氚浓度深度分布 C_i (即第 i 层的原子数密度)为唯一的未知数, 因此可很方便地求解氚浓度深度分布数据 C_i 。以上的反演计算过程示于图 2。

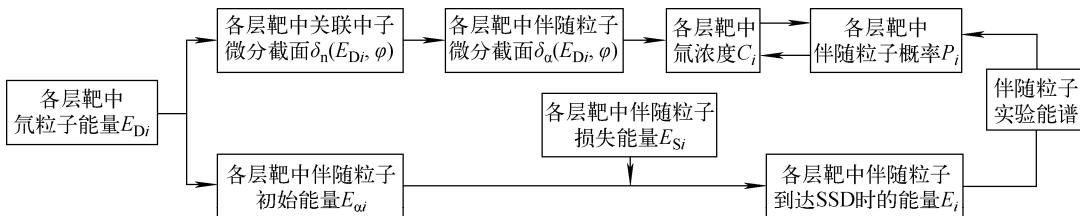


图 2 反演模型原理图

Fig. 2 Principle diagram of inversion model

2 测试对象描述和相关参数计算

测试反演模型所用的伴随 α 能谱如图 3 所示, 该能谱参考中国原子能科学研究院的高压倍加型氘氚中子发生器实验测量结果^[20], 但由于缺乏测量时间及测量时间内轰击氚靶的氘束

流详细信息, 因此原始图中纵坐标 α 粒子计数在本文中只具有相对意义。实验布局如图 1 所示, 入射氘粒子能量为 0.3 MeV, 氚靶的吸氘材料为钛, 该氘钛靶与氘粒子运动方向的夹角 $\beta=45^\circ$, 伴随粒子管道与氘粒子运动方向的夹

角 $\varphi = 135^\circ$ 。SSD 前放置 $2 \mu\text{m}$ 厚的铝箔。 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 微分截面数据来自 ENDF 数据库, 如图 4 所示。

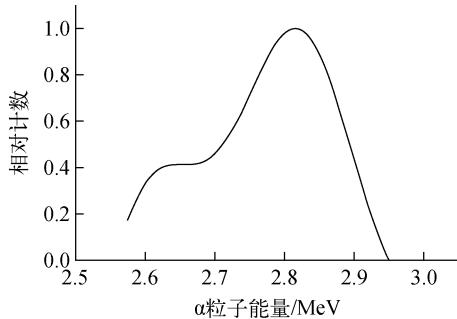


图 3 伴随 α 能谱

Fig. 3 Associated α spectrum

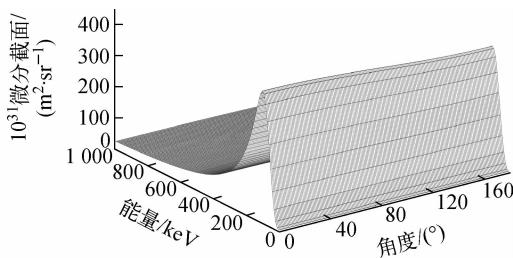


图 4 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反应的微分截面

Fig. 4 Differential cross section of $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$

3 反演结果分析

将以上参数代入反演模型, 沿氟粒子入射方向将氟钛靶分为 1 000 层, 氟粒子穿越每层氟钛靶损失能量为入射能量的 $1/1\,000$, 第 i 层氟钛靶中入射氟粒子能量 E_{di} 可由 i 和入射能量 0.3 MeV 计算获得, 可根据阻止本领获得每层氟钛靶的厚度 d_i , 然后根据式(1)计算各层氟钛靶 135° 方向出射 α 粒子的初始能量 $E_{\alpha i}$, 不同层氟钛靶所产生的初始 α 粒子在氟钛靶中穿越的距离由式(2)计算。根据穿越的距离, 使用 SRIM2010 计算 α 粒子在穿越氟钛靶过程中的能量损失, 同理计算出 α 粒子在穿越铝箔中能量损失, 最后获得 α 粒子到达伴随粒子法 SSD 时的能量 E_i 。

随后根据反应动力学公式, 获得各层在 135° 方向出射 α 粒子时关联中子的角度信息 θ_i 和能量信息 E_{ni} , 结果如图 5 所示。从图 5 可知, 随着入射深度的增加, 关联中子能量 E_{ni} 从

13.36 MeV 增加到 14.02 MeV, 出射角度 θ_i 从 53.29° 逐步增加到 59.78° 。然后根据所获得的各层靶中关联中子的角度信息 θ_i 和氟粒子能量信息 E_{di} , 插值得到 $\text{T}(\text{d}, \text{n})^4\text{He}$ 反应的微分截面, 获得各层靶关联中子微分截面 $\delta_n(E_{\text{di}}, \theta_i)$, 再通过式(6)获得各层靶在 135° 方向出射 α 粒子的微分截面 $\delta_\alpha(E_{\text{di}}, \theta_i)$ 。最终各层靶所产生的 α 粒子情况如图 6 所示。

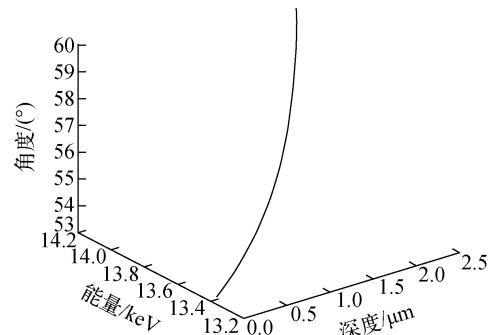


图 5 各深度关联中子情况

Fig. 5 Associated neutron from different depths

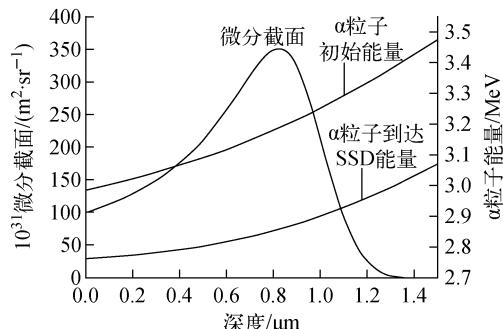


图 6 135° 方向靶中各深度的 α 粒子情况

Fig. 6 α particles from different depths with 135°

由于图 3 的伴随 α 粒子能谱纵坐标是相对计数, 因此从图 3 所得到的能量为 E_i 的 α 粒子强度信息 P_i 是相对值。将 $P_i, d_i, \delta_\alpha(E_{\text{di}}, 135^\circ)$ 代入式(5)求解 C_i 。由于 P_i 取相对值导致求出的 C_i 是相对氟浓度。 C_i 随靶深度的变化如图 7 所示。

由于 0.3 MeV 的氟粒子在靶中射程仅 $2.18 \mu\text{m}$, 且入射角度为 45° , 在靶的垂直方向入射深度仅 $1.55 \mu\text{m}$, 因此图 7 只能获得 $1.55 \mu\text{m}$ 深度以内的靶中的氟浓度信息。从图 7 可知, 氟浓度在靶中的深度分布类似驼峰。

靠近界面位置处的两个氚浓度峰可能是制靶时钛原子对从界面处扩散进来的氚的逐渐捕获形成的,而氚浓度在两个驼峰之间的低谷可能是由于实验时沉积氚粒子对氚的置换造成的。通过SRIM2010计算可知,入射的氚粒子在靶中主要沉积在0.8~1 μm深度之间,最可几的沉积深度在0.94 μm处,由于沉积的氚对氚的置换,使得氚浓度在0.9 μm左右损失较明显,在两个氚浓度峰值之间产生了一个低谷。这种上升-下降-上升-下降趋势在以往对旧靶中氚浓度深度分布的测量中均曾观察到^[17],由于本文参考使用的α能谱也源自使用过一段时间的氚靶,因此所求解出的氚浓度深度分布基本符合物理事实。

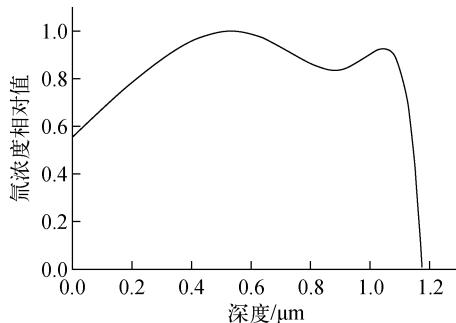


图7 氚浓度的深度分布

Fig. 7 Depth profile of tritium concentration

4 讨论

在目前氘氚中子发生器的源中子分析程序中,作为输入参数之一的氚靶中氚浓度深度分布因测量代价高被假设为均匀分布,而本文提出的利用伴随α粒子能谱信息反演氚浓度深度的方法,能方便获得氚浓度深度分布数据。但本方法也对氘氚中子发生器的伴随α粒子能谱测量提出了新的要求。实际上,目前伴随粒子法测量系统主要用途是中子强度监测,大多未进行能量刻度,因此应用本方法时需对探测器进行细致的能量刻度,同时要提高能谱测量中的分辨率和稳定性。另外,若针对旧氚靶中氚浓度深度分布测量,存在较多的干扰粒子^[21],如随着氚的自沉积,产生来自D(d, p)T反应的质子的干扰;随着氚衰变的产物³He的累积,产生来自³He(d, p)⁴He反应的α粒子的干扰。因此,需优化伴随粒子谱中粒子分辨能力,以获

得粒子分辨良好的α能谱。在理论模型方面,本文的反演模型有待进一步改进,目前氚粒子、α粒子阻止本领计算时未考虑氚浓度深度变化带来的影响,导致反演模型并不完全自治,且现有的阻止本领计算模型的结果存在一定的不确定性,该不确定性对氚浓度深度分布反演结果有何影响尚待评估。本方法结果的不确定度分析需建立在对实验和理论进一步研究的基础上,目前相关研究正在进行中。本方法结果的正确性,一方面可使用其他氚浓度测量方法进行验证,另一方面也可使用不同监测角度下的伴随α能谱的反演结果相互进行验证。

5 结论

本文探讨了一种利用伴随α粒子能谱反演氚浓度深度分布的方法,建立了反演模型,并对反演模型进行了测试,测试结果表明反演所得的氚浓度深度分布趋势基本与已报道的结果相符合。本方法能在不干扰中子发生器实验的情况下,获取与实验同步的氚靶中氚浓度深度分布信息,具有较强的实用性。综上所述,利用伴随α粒子能谱获取氚靶中氚浓度深度分布的方法具有很好的应用前景,有望解决氘氚中子发生器源中子分析中氚浓度深度分布的测量问题。

感谢中国原子能科学研究院阮锡超研究员的指导。

参考文献:

- [1] LÖVESTAM G. EnergySet: A programme to calculate accelerator settings and neutron yield data for the IRMM VdG Laboratory, JRC-IRMM Internal Report GER/NP/2/2002/06/20 [R]. Geel, Belgium: IRMM VdG Laboratory, 2002.
- [2] BIRGERSSON E, LÖVESTAM G. NeuSDesc: Neutron source description software manual, EUR report 23794 [R]. Luxemburg, European Communities: Office for Official Publications of the European Communities, 2008.
- [3] DROSG M. DROSG-2000: Codes and database for 59 neutron source reactions, IAEA-NDS-87 [R]. Vienna: IAEA, 2005.
- [4] SCHLEGEL D. TARGET user's manual PTB

- laboratory report, PTB-6. 42-05-2 [R]. Braunschweig, Germany: PTB Laboratory, 2005.
- [5] MILOCCO A, TRKOV A. Modelling of the production of source neutrons from low-voltage accelerated deuterons on titanium-tritium targets [J]. Science & Technology of Nuclear Installations, 2008, 340282.
- [6] PILLON M, MARTONE M, RADO V. Characterization of the source neutrons produced by the Frascati neutron generator[J]. Fusion Engineering & Design, 1995, 28(S1-2): 683-688.
- [7] MILOCCO A, TRKOV A, PILLON M. A Monte Carlo model for low energy D-D neutron generators[J]. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, 2012, 271(1): 6-12.
- [8] 中国原子能科学研究院快中子激发曲线组. 加速器单能中子源常用数据手册[M]. 北京:中国原子能科学研究院, 1976:218.
- [9] 姚泽恩, 岳伟明, 罗鹏, 等. 厚靶 $T(d,n)^4He$ 反应加速器中子源的中子产额、能谱和角分布[J]. 原子能科学技术, 2008, 42(5): 400-403.
YAO Zeen, YUE Weiming, LUO Peng, et al. Neutron yield, energy spectrum and angular distribution of accelerator based $T(d,n)^4He$ reaction neutron source for thick target[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2008, 42(5): 400-403(in Chinese).
- [10] 岳伟明. D-T 中子发生器中子产额、能谱、角分布及中子伽玛混合场的模拟研究[D]. 兰州:兰州大学, 2008.
- [11] 罗顺忠, 杨本福, 龙兴贵. 中子发生器用氚靶的研究进展[J]. 原子能科学技术, 2002, 36(4/5): 290-296.
LUO Shunzhong, YANG Benfu, LONG Xinggui. Research progress on tritide target in neutron generator[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2002, 36 (4/5): 290-296 (in Chinese).
- [12] PEREVEZENTSEV A N, BELL A C, RIVKIS L A, et al. Comparative study of the tritium distribution in metals[J]. Journal of Nuclear Materials, 2008, 372(2-3): 263-276.
- [13] DAVIS J C, ANDERSON J D. Tritium depth profiling by neutron time-of-flight[J]. Journal of Vacuum Science & Technology, 1975, 12(1): 358-360.
- [14] 李景德, 谢大全, 陈淑英, 等. 用飞行时间法测量氚的深度分布[J]. 核技术, 1987(7): 22-23, 38.
LI Jingde, XIE Daquan, CHEN Shuying, et al. Measurement of tritium depth profile by flight time method[J]. Nuclear Techniques, 1987(7): 22-23, 38(in Chinese).
- [15] 丁伟, 施立群, 龙兴贵. PBS 法测量 Ti 膜中 H 同位素深度分布[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(增刊): 563-565.
DING Wei, SHI Liqun, LONG Xinggui. Measurement of H isotope profile in Ti film with PBS method[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2010, 44(Suppl.): 563-565(in Chinese).
- [16] HOSHIHIRA T, OTSUKA T, TANABE T. Visualization of hydrogen distribution around blisters by tritium radio-luminography[J]. Journal of Nuclear Materials, 2009, 386 (5): 776-779.
- [17] 董艾平, 李文杰, 王强. 氚轰击下氚靶中氚浓度深度分布的变换[J]. 东北师大学报: 自然科学版, 1991(2): 35-38.
DONG Aiping, LI Wenjie, WANG Qiang. The depth profile of tritium in TTI target under deuterium irradiation[J]. Journal of Northeast Normal University: Natural Science, 1991(2): 35-38 (in Chinese).
- [18] 赖财锋, 秦建国, 徐家云. 氚束轰击下氚钛靶中氚浓度的深度分布研究[C]//第三届全国核技术与应用学术研讨会会议资料文集. 北京: 中国核物理学会, 2012.
- [19] ZIEGLER J F, ZIEGLER M D, BIERSACK J P. SRIM: The stopping and range of ions in matter [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2010, 268 (11): 1 818-1 823.
- [20] 王黎明. 高压倍加器 14 MeV 实际中子场研究[D]. 北京: 中国原子能科学研究院, 2007.
- [21] 仲启平, 陈雄军, 卢涵林, 等. 伴随粒子法测量 $T(d,n)^4He$ 中子源注量率中的本底处理[J]. 原子能科学技术, 2005, 39(2): 130-133.
ZHONG Qiping, CHEN Xiongjun, LU Hanlin, et al. Background analysis for an associated particle method to measure the neutron fluence rate from the $T(d,n)^4He$ neutron source[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2005, 39 (2): 130-133(in Chinese).