# 大面积氘/氚靶制备及中子产额分析

梁斌斌,巴伟伟,王子默,彭怡刚,高 翔

原子高科股份有限公司,北京 102413

摘要:大面积氘/氚靶是实现高产额强流中子源的关键部件,是氘、氚中子源广泛应用的前提条件。本工作采用磁控溅射镀膜与多弧离子镀结合的方式,制备以铜或钼为基底、直径大于 500 mm 的大面积钛膜。针对制备的钛膜,采用自研的氘/氚靶生产系统,经过除气、净化、高温吸氘/氚、尾气回收等流程,生产了氘/氚钛原子比大于 1.85 的氘靶、氚靶,采用 ¢22 mm 的小靶片,进行氘束流加速器中子产额测试,研制的氘靶中子产额达到8.0×10<sup>8</sup>/s,根据氘靶与氚靶反应截面计算氚靶中子产额,相同条件下,氚靶的中子产额在 1.0×10<sup>11</sup>/s 以上。以上测试结果表明,本工作研制的 ¢500 mm 大面积氘/氚靶,可实现强流中子源的高产额中子输出,达到国际先进水平。

关键词:氘靶;氚靶;中子源;中子发生器
中图分类号:TL503.4 文献标志码:A
doi:10.7538/bhx.2024.YX.2023044

**文章编号:**0253-9950(2024)02-0137-06

# **Preparation and Neutron Yield Analysis** of Large Area Deuterium/Tritium Target

LIANG Bin-bin, BA Wei-wei, WANG Zi-mo, PENG Yi-gang, GAO Xiang

HTA Co., Ltd., Beijing 102413, China

**Abstract:** The large deuterium/tritium target is the key component to achieve high yield and high current neutron source, which is the precondition for the wide application of deuterium/ tritium neutron source. At present, there are mature deuterium/tritium titanium targets in scientific or engineering applications abroad, and the neutron yield generally reaches the level of  $10^{13}$ /s. However, the technology of large-area target film in China is immature. The scientific and industrial application of large-area target film is rarely reported. The main problem is that the deuterium/tritium target can not reach the high yield, and the large area of the target film prepared is uneven, the binding force is poor and easy to fall off. In this paper, in order to solve the above mentioned problems and optimize the performance of the target film, magnetron sputtering coating and multi-arc ion plating were combined to prepare large-area titanium films with copper or molybdenum substrate and diameter greater than \$500 mm. At the same time, the feasibility of erbium film, scandium film and zirconium film preparation was explored by preparing large area deuterium-titanium or tritium-titanium targets with high binding force and high deuterium-tritium-titanium ratio. Deuterium and

收稿日期:2023-04-20;修订日期:2023-11-20

tritium targets with deuterium/tritium titanium ratio greater than 1.85 are produced by using self-developed deuterium/tritium target production system after degassing, purification, high temperature deuterium absorption, tail gas recovery and other processes. In order to better utilize the functions of each film layer, scanning electron microscopy was used to observe the cross-section of the film layer in the experiment. The results show that the clear interface is observed among the base layer, transition layer, and functional layer. The prepared titanium film was tested for neutron yield using a deuterium ion accelerator, and the effects of deuterium ion beam current and anode voltage on neutron yield were analyzed. The experiment shows that with the increase of deuterium beam current, neutron yield shows a linear increase in the range of 700  $\mu$ A. The effect of anode acceleration voltage on neutron yield increases exponentially in a quadratic relationship. The neutron yield of the developed deuterium target is more than  $8.0 \times 10^8/s$ , and the neutron yield of the tritium target is estimated according to the reaction section of the deuterium target and the tritium target. Under the same conditions, the neutron yield of the tritium target is more than  $1.0 \times 10^{11}$ /s. The test results show that the developed  $\phi$ 500 mm large area deuterium/tritium target can achieve the high-yield neutron output of the high-current neutron source, reaching the highest neutron flux of  $10^{13}$ /s in the world.

Key words: deuterium target; tritium target; neutron source; neutron generator

氘、氘中子源在科学研究、先进核能技术、核技术应用以及中子科学等方面的重要应用,主要体现 在石油、地质、矿物勘探以及生物、食品、医疗、聚变 能源以及聚变科学等诸多领域<sup>[1-4]</sup>。氘、氚靶是研 制氚中子源的关键部件,氘、氚靶性能的优劣直接 决定了中子源的使用寿命,中子产额及稳定性是 氘-氘、氘-氚中子源性能的限制性因素<sup>[5-7]</sup>。

目前国内外约有 20 台左右的强流中子发生 器在应用<sup>[8-12]</sup>,中子产额达到或超过了 10<sup>12</sup> ~ 10<sup>15</sup> s<sup>-1</sup>量级水平,国外高产额强流中子发生器 氘/氚靶多采用圆形或球冠形靶片,含氚靶膜呈环带 形状分布,一般靶面积较大,直径大多超过200 mm 以上,可绕中心轴快速旋转,靶背面采用高速循环 水冷却,以保证工作条件下,靶膜温度可控,不至 于导致氚的大量释放,影响中子产额,靶片主要技 术参数列于表 1。对比国际先进水平,我国强流 氘、氚中子源还存在不小的差距,其中,国内制备 的氘/氚靶尺寸较小,直径普遍在 \$50 mm 以下, 主要应用于小型氘-氚中子发生器以及中子管,中 子产额一般在 10<sup>11</sup> s<sup>-1</sup>以下水平,高产额大型中子 发生器报道较少。20 世纪 90 年代,中国原子能 科学研究院同位素研究所开展了大量靶膜制备研 究,并为兰州大学等单位提供了少量氚靶,靶膜直 径为 202 mm,T/Ti 原子比≈1.5,后来由于人 员、技术流失,已停止供应二三十年<sup>[13-14]</sup>。

本工作拟通过磁控溅射镀膜与多弧离子镀镀 膜结合的方式,制备 \$10~\$500 mm 的钛膜,采用 小尺寸钛膜吸氘实验以及氘-氘中子产额测试分 析,根据理论与实验结合的方式推算大面积氘、氚 靶中子产额,分析制备大面积氚靶的技术可行性。

表 1	国内外氘、氚靶技术参数比对表[9-10,12-16]	

Table 1	Comparison	of technical	parameters o	f deuterium/	tritium	target	[9-10, 1	2-16
---------	------------	--------------	--------------	--------------	---------	--------	----------	------

氘、氚靶	靶片 直径/mm	靶膜厚度/ (mg・cm <sup>-2</sup> )	束斑 直径/mm	加速电压/到靶束流 (kV/mA)	氘(氘) 钛原子比	最大 含氚量/Ci	10 <sup>-12</sup> 中子 强度/s <sup>-1</sup>
美国 RTNB- [ 型	<b>¢</b> 230	4.0	6	400/22	1.6~1.8	1 200	6
美国 RTNB- [] 型	<b>\$</b> 500	4.5	10	380/130	1.6~1.8	6 000	30
俄罗斯 SNEG-13	<b>\$</b> 420		15	300/100			20
日本 FNS	<b>¢</b> 230		15	400/20			5

注:1 Ci=3.7×10<sup>10</sup> Bq

#### 1 实验方法

## 1.1 靶膜制备

镀膜设备为非标研制 HCMS+CA-0808 型 真空镀膜机。该镀膜机同时具备磁控溅射镀膜、 多弧离子镀膜以及两种镀膜方式结合共同制备金 属薄膜的功能。镀膜机托盘尺寸 ∳520 mm,旋转 速率可调,基片可实现高温除气,除气温度最高 300 ℃,真空度可达到 10<sup>-5</sup> Pa 量级。采用该设备 可制备尺寸为 ∳10~∳500 mm 的各种金属薄膜。

靶膜制备前,对基片进行去油、去氧化层、高 温除气等预处理。处理后的基片,根据工艺需要 制备磁控溅射薄膜、多弧离子镀薄膜或者调控工 艺、制备密度不同的多层薄膜。靶膜制备过程如 下:经过处理的基片送入镀膜机,工件盘开启旋 转,抽真空至10<sup>-4</sup> Pa 以下,台阶式升温除气,温 度间隔 25~50 ℃,保温 30 min 以上,根据真空度 调节升温程序,维持真空度优于 10<sup>-4</sup> Pa,达到设 定除气温度后,降温至 200 ℃并保温 30 min 以 上,开启镀膜程序。通过调整镀膜机工艺参数,镀 膜程序分为预溅射、基底膜沉积、过渡膜沉积、功 能膜沉积以及保护膜沉积五步。

#### 1.2 氘/氚靶制备

钛作为吸氚性能优异、固氦性能良好的吸氚材料,广泛应用于氘、氚靶的制备。在金属衬底上制备钛膜,达到比液态氘/氚密度大1倍的高密度氘/ 氚,实现氘、氚靶制备。制备工艺流程示于图1。

制备的靶膜,装入系统,经过系统检漏检测, 靶膜高温除气激活,引入氘/氚气体,开始吸氘/ 氚,制备氘/氚靶膜,计算分析靶膜吸氘/氚量,达 到设定的氘/氚量后,系统降温,尾气回收处理。

## 1.3 中子产额测试

采用小尺寸靶膜吸氘后,利用中国原子能科 学研究院小型中子发生器,开展中子产额测试。 研究加速电压、氘束流强度等对中子产额的影响。 同时,依据加速电压、氘束流强度、氘-氘靶与氘-氚靶反应界面、氚靶表面计数测试等多种手段,评 价分析大面积氚靶中子产额,与国际先进水平进 行比对。

## 2 结果与讨论

#### 2.1 大面积靶膜制备

采用非标研制的真空镀膜机,多批次镀膜,先 采用小尺寸样品,分区镀膜,调整工艺分析钛膜厚 度分布变化,结果示于图 2。工艺确定后,在钼基 底上制备了最大 \$500 mm 的钛膜(图 3),同时,利 用小尺寸样品,分析钛膜厚度均匀性(图 3)。



图 1 氘、氚靶制备流程图

Fig. 1 Preparation flow chat of deuterium/tritium target



图 2 小尺寸钛膜样品 Fig. 2 Small size titanium film samples

如图 2 所示,在 \$520 mm 的托盘上,均匀布 置 \$22 mm、\$40 mm、\$50 mm 以及长方形形状的 样品,测试整个托盘范围内的镀膜厚度均匀性变 化情况。经过测试膜厚均匀性结果列于表 2。 表 2结果表明,\$500 mm 的膜层不同位置厚度均 匀性偏差在±5.0%范围内。钛膜厚度均匀一致, 可保证在后续产生中子过程中,中子产额波动较 小,数据比较一致。

为了保证钛膜质量,防止钛膜与金属基底间 的扩散层太厚,影响钛膜结合力以及后续钛膜吸 氘,同时为了保证钛膜接触大气后空气中氧气、二 氧化碳等对钛膜表面层的影响,整个镀膜工程中, 采用镀膜工艺优化措施<sup>[17]</sup>,制备了总厚度在1.5~ 10 μm 范围内的多层钛膜。钛膜由基底向表面依 次分为打底层、过渡层、功能层和保护层(图 4)。 其中,打底层为致密的钛膜,沉积速率慢,密度接 近金属的理论密度。过渡层沉积速率较快,主要 是连接打底层与功能层,防止沉积速率过快,导致 两层膜分层脱落。功能层采用快速沉积方式,形 成较为疏松的柱状晶结构,方便氘、氚原子通过孔 道、缝隙向内扩散,快速吸氚,同时抵消吸氘晶体 肿胀的挤压应力。保护层采用金属镍,厚约20 nm, 防止钛膜样品与空气直接接触。制备的样品经过 捷克 Fei qauant650 场发射扫描电镜测试,测试电 压 20 kV,束斑 3.0 nm,结果示于图 5。



图 3 \$500 mm 的钛膜 Fig. 3 \$500 mm titanium film

编号	膜厚/μm	膜厚偏差/%	编号	膜厚/μm	膜厚偏差/%		
1	2.23	-1.91	6	2.26	-0.61		
2	2.31	1.91	7	2.32	2.10		
3	2.38	4.99	8	2.22	-1.96		
4	2.26	-0.31	9	2.32	2.05		
5	2.19	-3.47	10	2.21	-2.79		





Fig. 4 Diagram of multi-layer titanium film



钛膜厚度 2.5 μm 图 5 钛膜样品电镜图 Fig.5 SEM micrograph of titanium film

经过图 5 可知,实际制备的 2.5 μm 厚的钛 膜,可明显看到打底层、过渡层与功能层分区。其 中打底层与过渡层厚度约 300 nm 左右,由于保 护层厚度只有 20 nm,扫描电镜未能显示。

# 2.2 氘、氚靶制备结果

采用研制的氘、氚靶生产测试系统,根据氘、 氚靶制备流程,开展了多批次小样品吸氘测试,部 分尺寸的测试样品示于图 6、图 7。

制备的氘靶有长方形、圆形,采用理想气体状态方程,根据钛膜质量、气体压力、温度变化,计算 钛膜吸氘量。D/Ti原子比的理论值为2,充氘量



图 6 长方形不锈钢基底氘靶 Fig. 6 Deuterium target with rectangular stainless steel substrate

越多,越有利于后续中子产额测试。一般认为, D/Ti原子比>1.2,即可开展中子实验,满足中子 产额要求。如图 6 中所示不锈钢基底氘靶 D/Ti 原子比已达到 1.86,图 7 中所示钥基底氘靶D/Ti 原子比达到 1.89,D/Ti或 T/Ti原子比大于 1.85 以上,完全满足中子实验需要。



Fig. 7 \$50 mm deuterium target with molybdenum substrate

#### 2.3 中子产额测试

利用中国原子能科学研究院核物理所核数据 国家实验室的小型氘离子加速器,测试了研制的 φ22 mm 氘靶中子产额,分析了氘离子束流、阳极 加速电压对中子产额的影响,结果示于图 8、图 9。 由图 8、9 可以看出:在 0~700 μA 范围内,随着氘 束流的增加,中子产额呈现线性增长;阳极加速电





压对中子产额的影响,成二次方指数关系增长。



在中国原子能科学研究院核物理所核数据 国家实验室,利用大型加速器,开展了270 kV、 360 μA条件下的 φ50 mm 氘靶中子产额测试,中 子产额约为 8.0×10<sup>8</sup>/s。

为了利用 D-D 中子产额数据评估 D-T 中子 产额,采用多种方法进行了数据分析,首先使用氘 束流加速器测试氚靶表面发射率,设置仪器参数 与中国原子能科学研究院历史氚靶数据测试仪器 参数一致,通过与中国原子能科学研究院数据对 比得到本工作制备的氚靶性能,本工作研制的氚 靶实际中子产额列于表 3。

另外,根据 D-D 反应截面与 D-T 反应截面数 据分析,在 D 离子束能量 E = 107 keV 条件下, D-T反应截面为 400 mb(1 mb =  $10^{-27}$  cm<sup>2</sup>),而 D-D反应截面为2.6 mb,D-T 反应截面是 D-D 反 应截面的 153 倍<sup>[7]</sup>,因此,D-T 反应的中子产额远 高于 D-D 反应。根据倍数关系,大致推算氚靶中 子产额,具体测试数据列于表 4。综合氚靶表面 发射率与反应截面的理论计算分析,研制的氚靶, 在 270 kV、360  $\mu$ A 条件下,均可获得 1.5×10<sup>11</sup>/s 量级的中子产额,这是目前国内,采用中子发生器 可获得的最高中子产额水平。

Table 3 Tritium target surface emissivity test data

氚靶	$10^{-3}$ 表面发射率/s <sup>-1</sup>	中子产额 $/s^{-1}$	氚钛(T/Ti)原子比
原子能院历史氚靶	25.4	9.6 $\times 10^{10}$	>1.20
本工作研制的氚靶	38.7	$1.5  imes 10^{11}$	>1.85

表 3 氚靶表面发射率测试数据

表 4 氘靶与氚靶中子产额数据 Table 4 Neutron yield data of D target and T target

靶	東流/μA	高压/kV	探测器计数率 $/s^{-1}$	转换系数	中子产额 $/s^{-1}$
氘靶	360	270	83	9.7 $\times 10^{6}$	8.0×10 <sup>8</sup>
氚靶	360	270	12 699	$1.2 \times 10^{7}$	$1.52 \times 10^{11}$

根据美国 RTNS-Ⅱ型中子发生器氚靶测试 条件: 氚靶 \$500 mm、束斑直径 10 mm、380 kV、 130 mA,得到中子产额 3×10<sup>13</sup>/s<sup>[15]</sup>;而本工作研 制的氚靶测试条件: 氚靶 \$500 mm、束斑直径 5 mm、270 kV、360 µA,得到的中子产额为 1.52× 10<sup>11</sup>/s;美国 RTNS- II 型束斑面积为本工作研制 「氯靶的4倍,加速电压为1.4倍, 氘束流为361 倍,三个参数乘积即为3032.4倍,因此,根据中 子产额倍数关系,3×10<sup>13</sup>/s的3032.4倍,即为 3.03×10<sup>14</sup>/s。说明本工作研制的大面积氚靶在 与美国氚靶相同测试条件下,中子产额可达 3.03× 10<sup>14</sup>/s,比 RTNS-Ⅱ型中子发生器产额还高。考 虑到中子产额的影响因素较多,本工作研制的氚 靶实际产额应该与美国的氚靶均在 1013/s 量级, 说明本工作研制的大面积氚靶,可实现国际先进 水平的高产额中子输出,开展各类科学与工程应 用试验。

#### 3 结 论

(1) 实现了最大 \$500 mm 的大面积靶膜制备, 靶膜厚度均匀性控制在±5.0%以内;

(2)通过调整镀膜工艺,实现了打底层、过渡 层、功能层以及保护层多层钛膜制备;

(3)获得了加速电压、氘束流对中子产额的 影响关系,随着氘束流的增加,在至少 700 μA 范 围内,中子产额呈现线性增长;阳极加速电压对中 子产额的影响,成二次方指数关系增长;

(4) 根据氘靶中子产额数据、D-D 靶与 D-T 靶反应截面以及氚靶表面发射率评估,制备的大 面积氚靶可实现国际水平的高产额中子输出。

#### 参考文献:

- [1] 丁大钊,叶春堂,赵志祥.中子物理学:原理、方法与应用[M].北京:原子能出版社,2001.
- [2] Faure C, Bach P, Bernardet H, et al. Tubes scellesgenerateurs de neutrons[J]. Vide Couches Minces, 1982, 212: 5-8.
- [3] 袁汉鎔. 中子源及其应用[M]. 北京:科学出版社,

1978.

- [4] 刘林茂,刘雨人,景士伟.中子发生器及其应用[M]. 北京:原子能出版社,2005.
- [5] 彭述明,周晓松,陈志林. 氚化学与氚分析进展与展 望[J]. 核化学与放射化学,2020,42(6):498-512.
- [6] 刘国财,张培旭,刘志珍,等.密封中子管氘-氘产额 及二次电子抑制[J].核化学与放射化学,2021, 43(3):301-308.
- [7] 陈志林,常瑞敏,贺月虹,等. 氚靶生产现场氚监测系统的构建[J]. 原子能科学技术,2010,44(7):893-896.
- [8] Voronin G, Kovalchuk V, Svinin M, et al. Development of the intense neutron generator SNEG-13[R]. St. Petersburg, Russia: Research Institute of Electrophysical Apparatus, 1994.
- [9] International Atomic Energy Agency. Manual for troubleshooting and upgrading of neutron generators: IAEA-TECDOC-913[R]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1996.
- [10] Booth R, Davis J C, Hanson C L, et al. Rotating target neutron generator[J]. Nucl Instrum Methods, 1977, 145(1): 25-39.
- [11] Heikkinen D W, Logan C M. Tritium target performance at RTNS-II[J]. IEEE Trans Nucl Sci, 1983, 30(2): 1193-1196.
- [12] 中子发生器研制组,吕建钦,谢大林,等.600 kV 毫 微秒脉冲中子发生器研制[J].原子能科学技术, 2003,37(4):376-380.
- [13] 苏桐龄,孙别和,杨保太,等.300 keV,30 mA 氘粒 子加速器[J].原子能科学技术,1991,25(1):7-12.
- [14] 卢小龙,姚泽恩,杨尧,等.400 kV 强流中子发生器 的物理设计[J]. 原子能科学技术,2012,46(12): 1473-1479.
- [15] 宋逢泉.强流氘氚中子发生器直流束线与氚靶系统 关键技术研究[D].合肥:中国科学技术大学,2013.
- [16] Voronin G, Kovalchuk V, Svinin M, et al. Development of intense neutron generator SNEG-12[C]. Proceedings of EPAC 94, Vol. 3, 2678, London, June 27-July 1, 1994.
- [17] 梁斌斌,巴伟伟,王子默,等.强流氘氚中子源用 TiD<sub>2</sub> 靶膜制备技术研究[J].原子能科学技术, 2022,56(S1):265-271.