

# D-T 中子发生器用氚靶的存储时间对其结构稳定性的影响

刘洋<sup>1</sup>, 杨涛<sup>1</sup>, 王旋<sup>1</sup>, 吴凤娟<sup>1,2</sup>, 刘际伟<sup>2</sup>, 王博宇<sup>2</sup>

(1. 西南科技大学, 四川 绵阳 621010)

(2. 中国工程物理研究院, 四川 绵阳 621900)

**摘要:** 氚靶是 D-T 中子发生器的重要元部件, 氚靶在存储过程中存在着内部氚衰变并积累氦的过程, 氦泡的形成将对氚靶膜的稳定性产生重要影响, 因此研究存储数年的氚靶的辐照损伤效应对了解氚靶的有效使用寿命有重要意义。采用扫描电镜及其附带的能谱和 X 射线衍射对氚靶表层进行检测发现: 束流辐照以后氚靶表层元素主要为 Mo 和少量的 Ti, 表面不存在任何氚化物的物相结构。结果表明: 氚靶在长达 12 年的存储时间内, 表层氚化钛有效层存在大量脱落的现象。

**关键词:** 氚靶; 物相结构; 表面形貌; 中子发生器; 辐照效应

**中图分类号:** TL99

**文献标识码:** A

**文章编号:** 1002-185X(2017)06-1731-03

D-T 型中子发生器是重要的加速器中子源, 中子被广泛应用于核数据测量、辐照损伤研究、半导体抗核加固、辐照育种、油田测井、癌症治疗、活化分析, 国防安全和照相技术等各个方面<sup>[1-3]</sup>。尤其是近些年来, 恐怖活动和贩毒活动已成国际公害, 国际社会对利用中子检测隐藏爆炸物和毒品的的方法十分关注。固体氚靶是中子发生器的关键元件之一, 因金属钛的吸氢密度高达  $9.2 \times 10^{22}$  氢原子/cm<sup>3</sup>, 是一种吸氢密度很高的功能材料, 金属钛成为最佳的固体氚靶的制备材料, 通常在金属衬底上镀一层钛膜吸附氚制成中子发生器用氚靶。在存储过程中, 中子发生器氚靶中的氚逐渐衰变产生 <sup>3</sup>He, 并在靶膜中积累<sup>[4-6]</sup>。在存储初期, <sup>3</sup>He 释放速率很低, 当膜中 <sup>3</sup>He 累积量达到某一临界值时, <sup>3</sup>He 将大量释放, 靶在遭受震动和冲击的条件下会产生掉粉现象, 影响其正常的使用寿命。

本工作中子发生器上, 利用不同能量的 D<sup>+</sup> 离子束辐照已存储 12 年的氚靶, 并利用扫描电镜观察束流辐照后氚靶的表面微观特征, 用 X 射线衍射测试氚靶的物相结构特征, 以探究储存年限对氚靶表面结构的影响。

## 1 实验

采用箱式真空镀膜机制备钛膜。将经表面处理和高

真空除气后的钼衬底放置在电子枪镀膜机内的靶架上, 采用电子枪加热的方式将 99.9% 的高纯钛沉积在钼衬底上, 镀膜时系统真空度约为  $10^{-4}$  Pa。钛膜的氚化在无油超高真空金属系统内进行。通过加热氚化铀粉释放一定量的氚气, 加热钛膜吸氚制备成氚靶<sup>[7]</sup>。

实验所用 4 块氚靶的编号分别为 T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup>、T-3<sup>#</sup>、T-4<sup>#</sup>, 均制备于 2003 年。在 ZF-300 keV 型中子发生器上分别用能量为 210 keV, 束流强度为 1 和 1.25 mA 的 D<sup>+</sup> 离子束对 T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup> 靶进行连续辐照。中子发生器的实验装置如图 1 所示。利用扫描电镜观察束流辐照后氚靶的表面微观特征, 用 X 射线衍射测试氚靶的物相结构特征, 以便分析束流辐照对氚靶的损伤程度。

## 2 结果与讨论

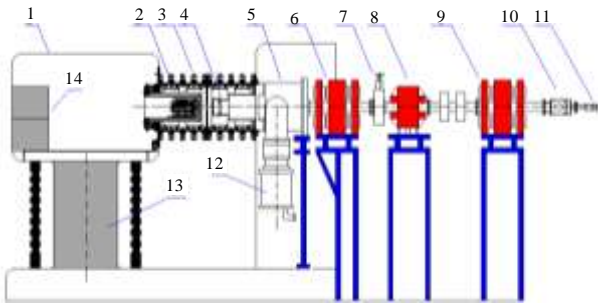
### 2.1 束流轰击后氚靶的表面形貌

D<sup>+</sup> 离子束轰击后 T-1<sup>#</sup> 氚靶的表面形貌如图 2 所示。可以观察到, 在微观结构上, 靶表面存在着明显的不均匀性。束流辐照后靶表面无明显的裂纹和烧蚀痕迹, 也观察不到靶表面存在由于氚的衰变产生氦聚集鼓泡的现象, 仅仅存在少量的杂质颗粒点。由于实验中采用的束流为分析束, 对于目前的强流中子发生器, D<sup>+</sup> 单原子离子成分约占总束流的 50%, 其余离子大部分为氚双原子离子<sup>[8]</sup>。由于氚靶的主要成分

收稿日期: 2016-05-26

基金项目: 国家自然科学基金(11505145, 11205136, 61505169); 西南科技大学校博士基金(14zx7166)

作者简介: 刘洋, 男, 1987 年生, 博士, 讲师, 西南科技大学国防科技学院, 四川 绵阳 621010, 电话: 0816-6089885, E-mail: liuyang\_benjamin@126.com



1-high voltage electrode; 2-ion source; 3-accelerating tube; 4-restrain electrode; 5-four-way; 6-quadrupole magnet I; 7-gate valve; 8-analysing magnet; 9-quadrupole magnet II; 10-observation window II; 11-target chamber; 12-vacuum pump; 13- isolation transformer; 14-ion source power

图 1 中子发生器结构示意图

Fig.1 Schematic of the neutron generator

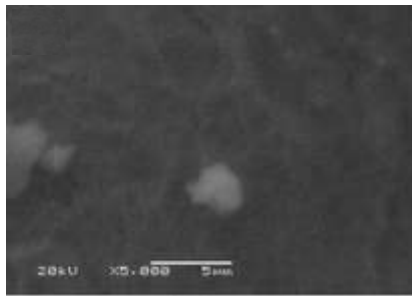


图 2 D<sup>+</sup>离子束轰击后 T-1<sup>#</sup>氙钛靶的表面形貌

Fig.2 Surface morphology of D<sup>+</sup> irradiated TiTi<sub>2</sub> film

为晶格原子钛，其刻蚀效应体现在对钛层的溅射退让。在 210 keV 能区，对于单原子 D<sup>+</sup>其溅射出的钛原子产额小于 10<sup>-4</sup>，而 D<sub>2</sub><sup>+</sup>小于 10<sup>-3</sup> 量级，因此分析束对 Ti 靶表面的溅射刻蚀效应较小。相关文献也早已表明，采用分析束能大幅提高靶的使用寿命<sup>[9]</sup>。

为了进一步研究束流辐照后氙钛靶膜的完整性，采用 X 射线能谱对膜的表面元素成分进行分析。氙钛靶的 X 射线能谱如图 3 所示。结果表明，靶面主要元素为 Ti、Mo（实验用氙钛靶 X 射线能谱较为一致），而且 Mo 基体的能峰强度最高，并伴随 Ti 的能峰。由此可以推测：经过长达 12 年的存储，氙钛靶表面可能存在大量钛膜脱落的现象。由于本次实验中的氙钛靶制备时间较早，且没有对靶在束流辐照前进行表面形貌的分析表征，所以此时很难断定钛膜的剥离是束流辐照造成还是释氦过程导致。

2.2 束流辐照前后氙钛靶的物相结构

对于吸氢的钛，已有文献明确表明，当内部氢同

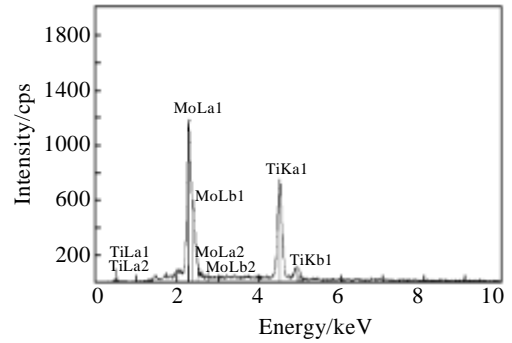


图 3 D<sup>+</sup>离子束流辐照后氙钛靶的 X 射线能谱

Fig.3 Energy dispersive X-ray spectrometric (EDX) with SEM of the D<sup>+</sup> irradiated TiTi<sub>2</sub> film

位素浓度发生变化时，氢（氘、氚）化钛的晶体结构类型也将随之改变<sup>[10]</sup>。氙的半衰期为 12.43 年，经过 12 年的存放其内部的氙逐渐衰变生成 <sup>3</sup>He，当足够的 <sup>3</sup>He 原子聚集时，会形成直径达数十纳米的高压氦泡，将引起吸氙钛膜力学性能下降，产生氦脆现象<sup>[11]</sup>。另外，一部分 <sup>3</sup>He 还将沿着膜内部的缺陷和裂纹从表面释放。因此，对于存放 12 年以后的氙钛膜，其内部必定会析出纯 Ti 的物相。为了进一步验证作者的想法，并探究氙钛膜的脱落是在辐照前还是辐照后，采用 X 射线衍射对辐照的 T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup>和未辐照的 T-3<sup>#</sup>和 T-4<sup>#</sup>氙钛靶进行物相检测。氙钛靶的 X 射线衍射图谱如 4 所示。T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup>、T-3<sup>#</sup>和 T-4<sup>#</sup>氙钛靶的 XRD 图谱基本保持一致：与标准的 JCPDS 卡片相比，氙钛靶的衍射峰主要为钼衬底的物相峰，几乎不存在氙化钛或钛的物相。运用常规的 X 射线衍射分析，未发现氙化物或钛的物相，只能说明氙化物或钛的物相峰相对于钼的物相峰来说非常弱，或氙化物或钛的含量非常少。氙钛靶在储存的过程中由于内部 <sup>3</sup>He 的累积，形成高

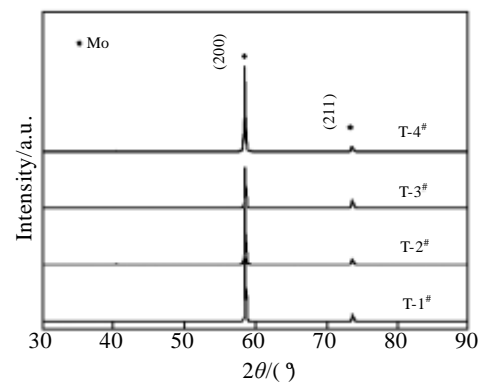


图 4 T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup>、T-3<sup>#</sup>和 T-4<sup>#</sup>氙钛靶的 XRD 图谱

Fig.4 XRD patterns of T-1<sup>#</sup>、T-2<sup>#</sup>、T-3<sup>#</sup> and T-4<sup>#</sup> TiTi<sub>2</sub> film

压力的氦泡导致钛膜逐渐与钼基体脱离。结合 SEM 所观察到的结果, 图 2 中所观察到的白色颗粒很有可能为 Ti 膜脱落后附着在钼基体上的残余部分。

### 3 结 论

1) 在中子发生器上采用 D<sup>+</sup> 离子束辐照存储 12 年的氚钛靶, 靶表面形貌在一定程度上呈现出不均匀性, 并还存在少量的杂质碎屑。

2) 辐照后的氚钛靶表面的主要元素为 Mo 和少量的 Ti; 辐照前后的靶表面并未检测出明显的 Ti 或氚化物的物相。

3) 2003 年制备的氚钛靶在存储过程中随着时间的增加, 表层氚化钛存在大量脱落的现象。这一现象很有可能是由于在存储过程当中氚衰变成氦, 氦原子聚集成氦泡并从 Ti 膜内逸出, 同时造成膜逐渐剥离的结果。

#### 参考文献 References

- [1] Srinivasan P, Priya S, Patel T *et al. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B* [J], 2015, 342: 125  
 [2] Wang Boyu(王博宇), Xiang Wei(向伟), Dai Jingyi(戴晶怡) *et al. Rare Metal Materials and Engineering*(稀有金属材料与

- 工程)[J], 2011, 40(6): 1105  
 [3] Zu Xiulan(祖秀兰), Zhou Changgeng(周长庚), Lou Benchao(娄本超) *et al. High Power Laser and Particle Beams*(强激光与粒子束)[J], 2009, 21(3): 451  
 [4] Cheng G J, Shi L Q, Zhou X S *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 466: 615  
 [5] Zhang F F, Wang X, Jonathan B *et al. Scripta Materialia*[J], 2015, 109: 28  
 [6] Zhou X S, Zhang L, Wang W D *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 461: 157  
 [7] Liu J W, Liu Y, Qin X B *et al. Vacuum*[J], 2014, 99: 62  
 [8] Yao Ze'en(姚泽恩), Chen Shangwen(陈尚文), Dong Mingyi(董明义) *et al. Atomic Energy Science and Technology*(原子能科学技术)[J], 2003, 37(1): 25  
 [9] Pu Yubo(朴禹伯), Niu Zhanqi(牛占歧), Wang Xuezhong(王学智) *et al. Atomic Energy Science and Technology*(原子能科学技术)[J], 1993, 27(3): 193  
 [10] Lewis F A, Aladjem A. *Hydrogen Metal Systems*[M]. Zurich: Scitec Publications, 1996  
 [11] EI-Atwani O, Hattar K, Hinks J A *et al. Journal of Nuclear Materials*[J], 2015, 458: 216

## Influence of Storage Time of Tritium Titanium Target on Its Structural Stability in a D-T Neutron Generator

Liu Yang<sup>1</sup>, Yang Tao<sup>1</sup>, Wang Xuan<sup>1</sup>, Wu Fengjuan<sup>1,2</sup>, Liu Jiwei<sup>2</sup>, Wang Boyu<sup>2</sup>

(1. Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

(2. China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

**Abstract:** Tritium titanium target is an important assembly used in a D-T type neutron generator, the coexistence of the decayed helium and hydrogen isotope is inevitable in tritium-contained materials, and the stability of the tritium titanium target is influenced by the inner evolution of helium bubbles. It is therefore of essence to study the effect of ion irradiations on the lifetime of tritium titanium targets with a long storage time in a neutron generator. The surface morphologies, surface element types and surface phase structures were analyzed for the original or irradiated tritide targets. Results show that Mo and Ti are the main elements remaining on the irradiated surface, and hardly any trace of Ti or TiT<sub>x</sub> could be detected on the surface. It is concluded that after a storage time of nearly 12 years, the main part of the tritide film are striped by inner evolved helium bubbles.

**Key words:** tritide titanium target; phase structure; surface morphology; neutron generator; irradiation effect

Corresponding author: Wang Boyu, Ph. D., Associate Professor, Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, P. R. China, Tel: 0086-816- 2493591, E-mail: wangby2008@foxmail.com