

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2020.03.023

EPBS 方法分析含氘/氚钛膜及与 PVT 法的比较

陈浩¹, 安竹¹, 刘慢天¹, 丁伟²

(1. 四川大学原子核科学技术研究所 辐射物理及技术教育部重点实验室, 成都 610064;
2. 中国工程物理研究院 核物理与化学研究所, 绵阳 621900)

摘要: 本文使用 EPBS 方法分析了含氘及含氘与氚钛膜样品中氘及氚的含量与深度分布, 并将氚的分析结果与 PVT 方法所给出的结果进行了比较. 实验所使用的 Ti 膜衬底是 Mo, 在 EPBS 能谱的低能端, Mo 元素的模拟谱与实验谱偏差较大, 会导致分析结果不准确. 为消除 EPBS 实验谱中的 Mo 谱对分析的影响, 本文使用了一个 Mo 衬底的 $\text{TiH}_{1.81}$ 样品成功扣除了 EPBS 实验谱中的 Mo 本底, 扣除 Mo 本底后可以直接模拟样品中氘与氚的能谱, 使得分析结果更为精确可靠.

关键词: 氚分析; EPBS 方法

中图分类号: O582 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2020)03-0554-05

Analyses of titanium films containing deuterium/tritium by EPBS method and comparison with PVT method

CHEN Hao¹, AN Zhu¹, LIU Man-Tian¹, DING Wei²

(1. Key Laboratory of Radiation Physics and Technology of Ministry of Education, Institute of Nuclear Science and Technology, Sichuan University, Chengdu 610064, China;
2. Institute of Nuclear Physics and Chemistry, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

Abstract: Enhanced proton backscattering spectrometry (EPBS) method was utilized in this paper for tritium/deuterium analysis in titanium film, and the results of tritium obtained by EPBS method were compared with PVT method. The substrate of Ti films used in our experiment was thick Mo slab, the experimental spectrum of Mo at low energy region cannot be fitted well, which may lead to inaccurate results. Therefore, a $\text{TiH}_{1.81}$ film with thick Mo substrate was used to remove the influence of Mo background yield in experimental spectra. After subtracting the Mo background yield in experimental spectra, we can fit well the tritium and deuterium spectra directly, which could make more accurate results.

Keywords: Tritium analysis; EPBS method

1 引言

氘及其化合物在核能与核技术等许多领域都得到了广泛的应用. 氘可以作为聚变反应堆的燃料和中子发生器的靶材料, 在农业与医学中用作

同位素示踪剂等, 因此精确分析材料中的氘含量及其深度分布具有重要的意义. 目前氘分析的方法有多种, 每种分析方法都各有优缺点^[1]. 卢瑟福背散射分析方法 (Rutherford Backscattering Spectrometry, RBS)^[2] 是一种粒子束分析方法,

收稿日期: 2019-04-04

基金项目: 中国工程物理研究院核物理与化学所基金项目(HG2016087)

作者简介: 陈浩(1992—), 男, 四川绵阳人, 硕士研究生, 研究方向为辐射物理与医学物理. E-mail: 623975504@qq.com

通讯作者: 安竹. E-mail: anzhu@scu.edu.cn

被广泛应用于材料分析中. 常规的卢瑟福背散射方法适合于分析轻元素基底中的重元素, 增强质子背散射方法 (Enhanced Proton Backscattering Spectrometry, EPBS)^[3]使用高能质子束替代 RBS 方法中的 α 粒子, 高能质子能够突破氘(D)、氚(T)、氦(He)等轻元素的库仑势垒, 发生核势散射, 从而大大增加轻元素(如 T、D)的反应截面, 增加背散射过程中对轻元素的分析灵敏度. 本文使用 2 MeV 的质子完成 EPBS 实验, 分析含氘及含氚与氚钛样品中氘/氚的含量与深度分布, 并将所获得的氘总含量与 PVT 方法所得结果进行比较. EPBS 实验能谱使用 SIMNRA 软件^[4]进行模拟分析. 在 EPBS 实验中, 由于质子在样品的 Mo 衬底中多次散射等因素的影响, 在 EPBS 实验能谱低能端 D 与 T 信号出现的区域, Mo 的实验谱与拟合谱差异较大^[5-6], 会导致分析的结果不准确. 若能将 EPBS 实验谱中的 Mo 谱扣除, 直接拟合 D 和 T 的实验谱, 便可以消除 Mo 本底对模拟结果的影响. 本文使用一个 Mo 衬底 TiH_{1.81} 样品来扣除实验样品 EPBS 谱中的 Mo 本底信号, 得到样品中 D 和 T 的含量与深度分布, 并将所得结果与 PVT 方法所得结果进行比较.

2 实验样品与实验过程

2.1 样品制备

本次实验制备了 7 个钛膜样品, 使用 1 mm 厚的 Mo 材料作为衬底, 通过蒸发镀膜法制得直径为 16 mm 的圆形 Ti 膜, 使用称量法测得 Ti 膜的质量, 用钛膜的质量除以钛膜的面积与钛膜的密度, 可得到钛膜的厚度, 使用此方法计算出的 Ti 膜厚度大约为 5 μm . 使用 EPBS 方法也可以测量出 Ti 膜的厚度, 测量结果在表 1 中给出, 误差为 5%左右, 两种方法得到的厚度值符合很好. 制备好 Ti 膜后, 3 块钛膜用于吸收氘气体, 3 块用于吸收氘氚混合气体, 1 块用于吸收氢气. 使用此方法制得了实验所用的 7 个样品. 根据测量吸收气体前后气体的压强变化, 可以使用 PVT 法计算出样品所吸收的氢同位素的含量. 样品信息如表 1 所示.

2.2 实验过程

本次 EPBS 实验在四川大学原子核科学技术研究所的范德格拉夫静电加速器上进行. 入射质子束的能量为 2 MeV, 束斑直径大小约为 2 mm, 束流方向与靶表面垂直, 使用的探测器为 Au(Si)

面垒探测器, 并放置在与束流同一水平面内, 与束流方向夹角为 165° , 靶室的真空度为 2×10^{-4} Pa, 死时间控制在 2%~4%左右, 实验过程中, 使用了 BUSY 与 PUR 信号.

表 1 样品信息. Ti-EPBS 表示用 EPBS 方法测量所得的 Ti 膜厚度, 样品 24# 中 H/Ti 比值为 1.81
Tab. 1 Sample information. The sample thickness measured by EPBS is denoted as Ti-EPBS and the ratio H to Ti in sample 24# is 1.81

样品 编号	Ti 膜层厚度/ μm		T/GBq	T/Ti	(D+T) /Ti	制备 日期
	Ti	Ti-EPBS				
18#	4.51	4.63	102.33	1.11	1.81	20170504
19#	4.71	4.52	104.56	1.08	1.81	20170504
20#	4.54	4.58	99.57	1.07	1.81	20170504
21#	4.50	4.54	157.61	1.71	—	20170504
22#	4.54	4.66	158.88	1.71	—	20170504
23#	4.49	4.41	159.08	1.73	—	20170504
24#	4.60	4.44	—	—	—	20170504

3 结果与讨论

3.1 扣除 Mo 本底产额

本次实验能谱使用 SIMNRA^[4]软件进行模拟分析, 模拟时, Ti 膜被均分为 5 层, Dual scattering 与 Multiple scattering 选项均选中, 阻止本领选用 SRIM. 研究发现, 由于质子在基底 Mo 元素多次散射信号等因素的影响, 在 EPBS 能谱的低能端氘与氚信号出现的区域, Mo 的拟合谱与实验谱偏差较大^[5-6], 会导致模拟结果不准确. 为了消除 Mo 衬底的影响, 使用了 TiH_{1.81}/Mo 样品(24#)来扣除 EPBS 实验谱中的 Mo 本底产额. 扣除掉 Mo 本底产额后只剩下氘与氚的能谱, 此时可以直接模拟氘与氚的能谱. 使用 SIMNRA 程序, 比较了靶结构与实验条件完全相同的条件下 TiT/Mo 与 TiH/Mo 的模拟谱, 其中 Ti 膜与 Mo 基底的厚度分别为 5 μm 和 1 mm, H 与 Ti 的比例和 T 与 Ti 的比例均为 1.81(与 24# 样品相同), 入射质子能量为 2 MeV, 模拟计算结果如图 1 所示.

从图 1 可以看出, TiH 样品与 TiT 样品的 Ti 谱和 Mo 谱吻合得很好, 所以样品中 T 被替换成 H 不会对 Mo 和 Ti 的谱产生影响, 且 24# 样品与表 1 所列出的其他样品的 Ti 膜厚度差异微小, 也不会对 D 和 T 能谱区域内的 Mo 本底产额造成影响, 因此采用 TiH/Mo 扣除 TiT/Mo 的 EPBS 谱中的 Mo 本底产额是可行的. 扣除 Mo 本底产额的

具体方法为:将 $\text{TiH}_{1.81}$ 样品的 EPBS 实验谱乘上一个常数,使其归一到各个含氘及含氘与氚样品的 EPBS 实验谱,然后用含氘(或含氘氚)样品的 EPBS 实验谱减去归一的 $\text{TiH}_{1.81}$ 实验谱,剩下的就是氘和氚的实验谱。

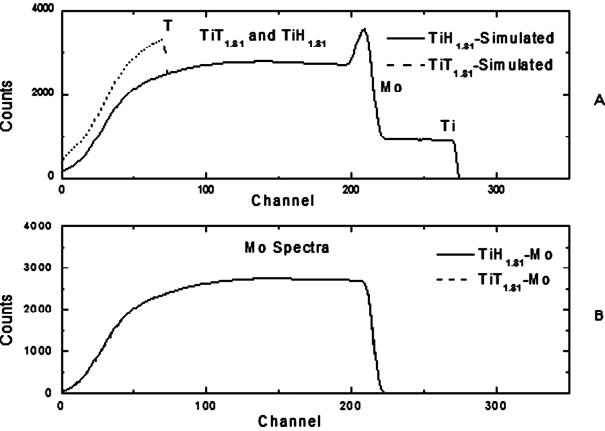


图 1 TiT/Mo 与 TiH/Mo 的模拟谱: (A) TiT/Mo 与 TiH/Mo 的模拟谱; (B) TiT/Mo 与 TiH/Mo 中的 Mo 模拟谱

Fig. 1 Simulation spectra of TiT and TiH samples with thick Mo substrates; (A) the total simulation spectra of the two samples; (B) the Mo simulation spectra of the two samples

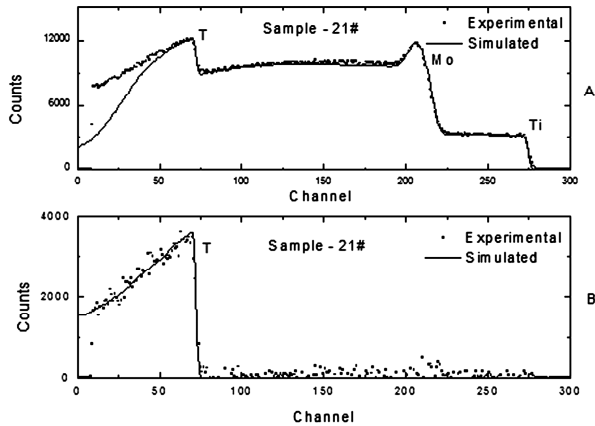


图 2 21# 样品模拟结果: (A) 21# 样品原始实验谱的模拟结果; (B) 扣除 Mo 本底产额后直接模拟 T 的实验谱的模拟结果

Fig. 2 Simulation results of sample 21 #: (A) the original experimental spectrum of sample 21 # and simulation result; (B) the experimental spectrum of sample 21 # after subtracting Mo background yield and simulation result

3.2 含氘样品的 SIMNRA 分析

使用 3.1 节中的方法扣除 18#、19# 和 20# 样品 EPBS 实验谱中的 Mo 本底产额,可以得到 T 的实验谱。当入射粒子为 2 MeV 质子时,EPBS 谱中只能够观测到约 $3\text{ }\mu\text{m}$ 厚 Ti 膜内的 T 信号,

实验中所使用的 Ti 膜厚度约为 $5\text{ }\mu\text{m}$,超过 $3\text{ }\mu\text{m}$ 厚的 Ti 膜内的 T 信号不能直接通过模拟氘的实验谱得到,但是样品中 T/Ti 的比值将直接影响 EPBS 谱中 T 信号与 Ti 信号的相对高度,因此可以通过 Ti 信号来间接分析超过 $3\text{ }\mu\text{m}$ 厚的 Ti 膜内的 T 的分布情况。图 2 为 21# 样品的模拟结果。

从图 2 中可以看出,不排除 Mo 信号时,在能谱高能端, Ti 信号与 Mo 信号拟合得很好,但在低能端实验谱与拟合谱的偏差较大;扣除 Mo 本底产额后直接模拟 T 谱, T 的实验谱可拟合得很好。在图 2 (A) 和 (B) 两次模拟过程中,靶结构完全相同,结合这两次模拟结果,可以得到 21# 样品中氘的含量及深度分布,用同样的方法,可以得到样品 22#, 23# 中氘的含量及深度分布,图 3 为几种样品中氘的深度分布图。

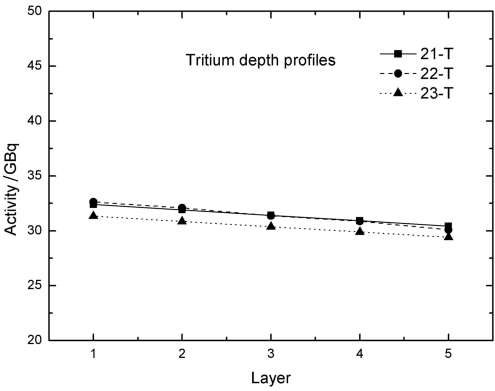


图 3 由 EPBS 测量获得的 21#、22# 和 23# 样品中 T 的深度分布

Fig. 3 Tritium depth profiles in samples 21 #, 22 # and 23 # obtained by EPBS method

模拟中所使用的 $\text{T}(p,p)\text{T}$ 反应截面来自于文献[7],误差约为 7.5%,总氘含量的统计误差低于 0.1%,每一层中氘含量的统计误差低于 1%。从图 3 可以看出,样品中 T 的含量逐层减少,但总体上基本均匀分布。

3.3 含氘与氚样品的 SIMNRA 分析

使用同样的方法扣除样品 18#、19# 和 20# 的 EPBS 实验谱的 Mo 本底产额,可以得到 D 和 T 的实验谱。当入射粒子为 2 MeV 质子时,在 EPBS 谱中只能够观测到约 $1\text{ }\mu\text{m}$ 厚 Ti 膜内的 D 信号[8];实验样品厚约 $5\text{ }\mu\text{m}$,分析过程中,样品被平均分为 5 层,每层厚约 $1\text{ }\mu\text{m}$,为了分析超过 $1\text{ }\mu\text{m}$ 厚的 Ti 膜内的 D 深度分布情况,在使用 SIMNRA 软件模拟时,每一层 D 与 T 的比例都设定

为与第一层相同(假定在 Ti 膜中, D 与 T 的扩散能力相同)。

SIMNRA 程序中没有 2 MeV 质子入射情况下 165° 散射角 D(p,p)D 的反应截面, 我们的模拟中使用的 D(p,p)D 反应截面是基于复旦大学所发表的实验结果^[9]与 IAEA 网站所发布的 ENDF/B-VII.1^[10]数据库。文献[9]中的入射质子能量范围是 1.8~3.2 MeV, ENDF/B-VII.1 数据库的入射质子能量范围是 0.5~3.6 MeV, 由于这两个截面相互之间差异较大, 我们将 ENDF/B-VII.1 的理论截面归一到文献[9]的实验结果之后用于我们的模拟分析。文献[9]中的 D(p,p)D 反应截面的实验误差作为我们模拟中所使用的 D(p,p)D 反应截面的误差。归一化过程如图 4 所示。

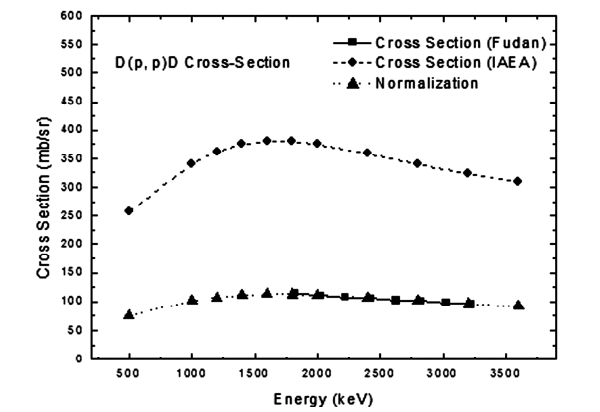


图 4 D(p,p)D 反应截面
Fig. 4 Cross-sections for D(p, p)D

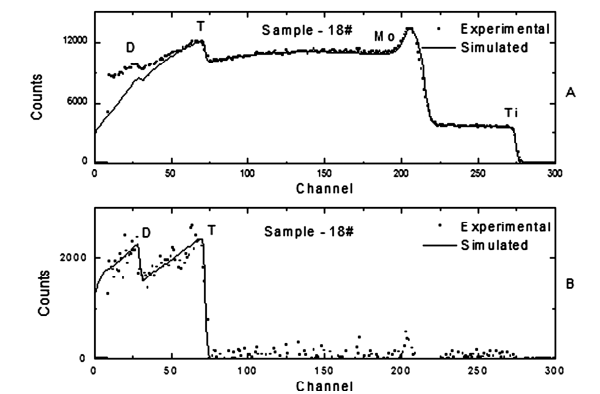


图 5 18# 样品模拟结果: (A) 18# 样品的原始实验谱模拟结果; (B) 扣除 Mo 本底产额后直接模拟 D 与 T 的实验谱的模拟结果
Fig. 5 Simulation results of sample 18#: (A) the original experimental spectrum of sample 18# and simulation result; (B) the experimental spectrum of sample 18# after subtracting Mo background yield and simulation result

图 5 为 18# 样品的模拟结果。从图 5 可见, 不排除 Mo 信号时, 在能谱高能端, Ti 信号与 Mo 信号拟合得很好, 但在能谱的低能端, 实验谱与拟合谱偏差很大, 扣除 Mo 信号后直接模拟 D 和 T 的谱, D 和 T 的实验谱可拟合得很好。在图 5 (A)和(B)的两次模拟过程中, 靶结构完全相同, 结合两次模拟的结果, 可以得到 18# 样品中 D 与 T 的含量与深度分布信息。使用此方法同样可得到 18#、19# 和 20# 样品的 D 与 T 的含量与深度分布。图 6 为几种样品的 D 与 T 的深度分布图。

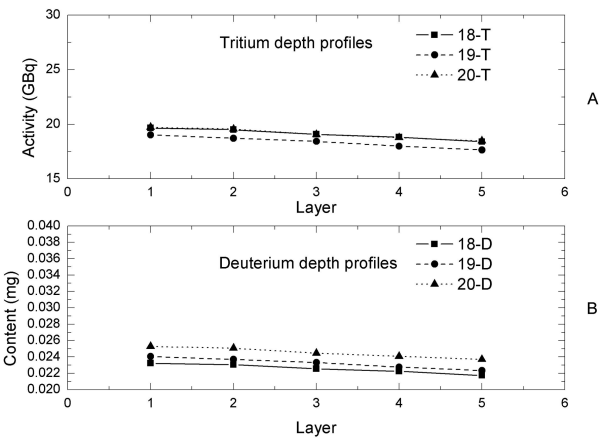


图 6 由 EPBS 测量获得的 18#、19# 和 20# 样品中 D 与 T 的深度分布
Fig. 6 Tritium and deuterium depth profiles in samples 18#, 19# and 20# obtained by EPBS method

模拟中所使用的 T(p,p)T 和 D(p,p)D 截面误差来自于文献[7,9], 都为 7.5%。总氘含量的统计误差低于 0.1%, 每一层 T 含量的统计误差在 1% 以内, 每一层 D 含量的统计误差在 1%~2%。从图 6 可以看出, 样品中 D 与 T 的含量逐层减少, 但总体上基本均匀分布。

使用 EPBS 方法测得的含氘钛样品和含氘与氚钛样品中的氘总含量列于表 2 中, 表中同时也给出了 PVT 方法所测得的样品中的氘总含量。

表 2 EPBS 方法与 PVT 方法测量所得的氘总含量
Tab. 2 Total tritium contents obtained by EPBS method and PVT method

样品编号	氘总含量/GBq	
	PVT	EPBS
18#	102.33	96.57
19#	104.56	94.06
20#	99.57	96.45
21#	157.61	161.17
22#	158.88	158.97
23#	159.08	153.39

从表 2 可以看出, EPBS 与 PVT 方法相比, 18#、19# 与 20# 样品中氚总含量的相差不超过 10%, 21#、22# 与 23# 样品中氚的总含量的相差不超过 5%.

4 结 论

本文使用 EPBS 方法测量了样品中 D 与 T 的深度分布和 T 总含量, 实验中使用了一个 $TiH_{1.81}$ 样品用于扣除 EPBS 实验谱中的 Mo 本底产额, 使测量结果更为精确, 并将 EPBS 方法测得的氚总含量与 PVT 方法所给的氚总含量进行了对比. 通过本文工作, 可得以下结论:(1)采用本文方法, 可成功扣除 EPBS 实验谱中的 Mo 本底产额, 可以更精确的模拟 D 和 T 的能谱, 使得到的结果更为准确可靠;(2)使用 EPBS 方法测量得到的氚总含量与 PVT 方法结果在 10% 内符合;(3)使用 EPBS 方法测得了样品中的 D 和 T 的深度分布, 结果表明 D 与 T 的深度分布由表及里逐层减少, 但总体上基本均匀.

参考文献:

[1] Perevezentsev A N, Bell A C, Rivkis L A, *et al.* Comparative study of the tritium distribution in metals [J]. J Nucl Mater, 2008, 372: 263.
[2] Chu W K, Mayer J W, Nicolet M A. Backscatter-

ing spectrometry [M]. New York: Academic Press, 1978.
[3] 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 (增刊): 563.
[4] Mayer M. SIMNRA User's Guide. Technical Report IPP 9/133, MPI für Plasmaphysik [R]. Germany: Garching, 1997.
[5] Barradas N P. Calculation of the low energy yield in RBS [J]. Nucl Instr Meth B, 2007, 261: 418.
[6] Fu T, An Z, Zhu J J, *et al.* Tritium and helium analyses in thin films by enhanced proton backscattering [J]. Chin Phys C, 2014, 38: 088203.
[7] Xia X J, Ding W, Zhang B, *et al.* Cross-section for proton-tritium scattering from 1. 4 to 3. 4 MeV at the laboratory angel of 165° [J]. Nucl Instr Meth B, 2008, 266: 705.
[8] Zhang H L, Ding W, Su R R, *et al.* Depth profiles of D and T in Metal-hydride films up to large depth [J]. Nucl Instr Meth B, 2016, 371: 174.
[9] Ding W, Shi L Q, Long X G, *et al.* Cross-section for D(p,p)D elastic scattering from 1. 8 to 3. 2 MeV at the laboratory angel of 155 ° and 165° [J]. Nucl Instr Meth B, 2009, 267: 2341.
[10] Evaluated nuclear data file (ENDF) [DB/OL]. [2019-02-07]. <http://www-nds.iaea.org/exfor/endl.htm>.

引用本文格式:

中 文: 陈浩, 安竹, 刘慢天, 等. EPBS 方法分析含氘/氚钛膜及与 PVT 法的比较[J]. 四川大学学报: 自然科学版, 2020, 57: 554.
英 文: Chen H, An Z, Liu M T, *et al.* Analyses of titanium films containing deuterium/tritium by EPBS method and comparison with PVT method [J]. J Sichuan Univ: Nat Sci Ed, 2020, 57: 554.