

用 $^3\text{He} \rightarrow \text{D}$ 核反应分析 Ti 中的 D^*

周颖耀 赵国庆 周筑颖 许卫东 杨福家

(复旦大学李政道物理学综合实验室, 上海 200433)

龙兴贵 翟国良 李宏发 杨时礼 赵鹏骥

(中国工程物理研究院, 绵阳 610003)

(1994年7月18日收到)

用 $\text{D}-^3\text{He}$ 核反应分析法分析中子发生器用 TiD_x 靶中 D 的含量 x , 并利用 Au-Si 面垒探测器测量了质子能谱, 获得了该探测器的灵敏层参量, 仔细研究了半导体探测器对高能质子的响应. 对质子射程同耗尽层厚度相当时的质子能谱进行的理论计算与实验现象一致.

PACC: 2555

1 引言

金属中所含的氢含量即使很少, 也会显著影响材料的性质, 因而氢及其同位素在金属材料中的行为一直是金属材料变性, 金属储氢和裂变聚变反应堆工程研究关注的问题. 目前离子束分析手段已作为一种成熟的手段广泛应用于材料中 D 成分与深度分布的无损分析, 其中质子-氘背散射 (PDBS), $^1\text{He}-\text{D}$ 前向反冲法 (ERD) 及 $^3\text{He}-\text{D}$ 核反应分析法 (NRA) 都是最常用的分析手段^[1]. 它们对 $\text{TiD}_x (x \approx 1.7)$ 中 D 的典型分析深度依次为 3.9, 1.0 和 $1\mu\text{m}$. 与 PDBS 相比, NRA 中质子和 α 粒子能量高, 可以与 ^3He 的背散射平台相区分开, 而与 ERD 相比, 对于高浓度的 TiD_x 样品, NRA 可从散射平台与反应产物谱的比较中直接求出 D 的含量, 避免了 ERD 中由束流归一带来的误差. 此外, TiD_x 样品易吸收水分, 而 H 的反冲谱在 ERD 中会干扰 $0.4\mu\text{m}$ 以后的 D 信号, NRA 的缺点是作为分析束的 ^3He 气体价格昂贵, 而且该反应 Q 值很大 (18.3 MeV), 会导致逆向运动学 (inverse kinematics) 效应^[2]: 在背向测量时, 对一定的 ^3He 入射能量, 从样品内层出射的 p 和 α 可以比表面出射的同种粒子能量更高逆向运动学效应增加了 NRA 谱的分析难度^[3], 通常需借助计算机模拟.

为了提高 NRA 方法对 D 的分析深度, 往往要求在加大入射 ^3He 能量的同时, 测量阻止本领低的质子谱而非 α 谱. 此外, 当测量重元素基底中低浓度的 D 含量时, 也要求屏蔽 He 离子, 从质子谱中获得 D 的信息. 由于一般 Au/Si 面垒半导体探测器的灵敏区厚度在 0.3 mm 以下, 而 $\text{D}(^3\text{He}, \text{p})\alpha$ 反应的 p 能量在 $13-16\text{ MeV}$ 之间, 其在 Si 中的射

* 中国工程物理研究院外基金资助的课题.

程长达 1.1—1.6 mm, 因而实验只能测得质子的能量损失 ΔE 谱. 为此, 有必要研究 Au/Si 探头在充当 ΔE 探测器时对人射质子的响应.

2 实验与讨论

2.1 TiD_x 中 D 的含量分析

TiD_x 厚样品是由中国工程物理研究院物理化学研究所采用吸附法制备的, 样品分析实验是在复旦大学 9SDH-2 型 $2 \times 3 \text{ MV}$ 串列加速器上的离子束分析管道进行. $^3\text{He}^+$ 束的能量选取为 700 keV, 以包括 630 keV 处的最大共振截面值. 样品表面与束线的夹角为 30° . 探测器在后向 150° 的几何下测量散射的 ^3He 和反应产生的 p 与 α . 调节探测器的偏压, 即调节其灵敏层厚度就可使质子的 ΔE 谱不与 ^3He 背散射谱及 α 谱重迭. 从选用 40V 偏压测得的能谱(图 1)上可以看出, 由于逆向运动学效应的影响, α 的表面道处于 α 能谱的最低端.

计算时将样品划分为许多薄层, 从厚 Δx 的第 j 层出射的 α 粒子产额可表示为

$$\Delta Y_j(E_0) = \frac{NN_{D,j}}{\cos \alpha} \Delta x \int_{\Omega_L} \frac{d\sigma_L(E_j, \theta_L)}{d\Omega_L} d\Omega_L, \quad (1)$$

式中 E_0 为人射束能量, E_j 是 j 层中 ^3He 离子入射能, N 为入射离子通量, $N_{D,j}$ 为 j 层

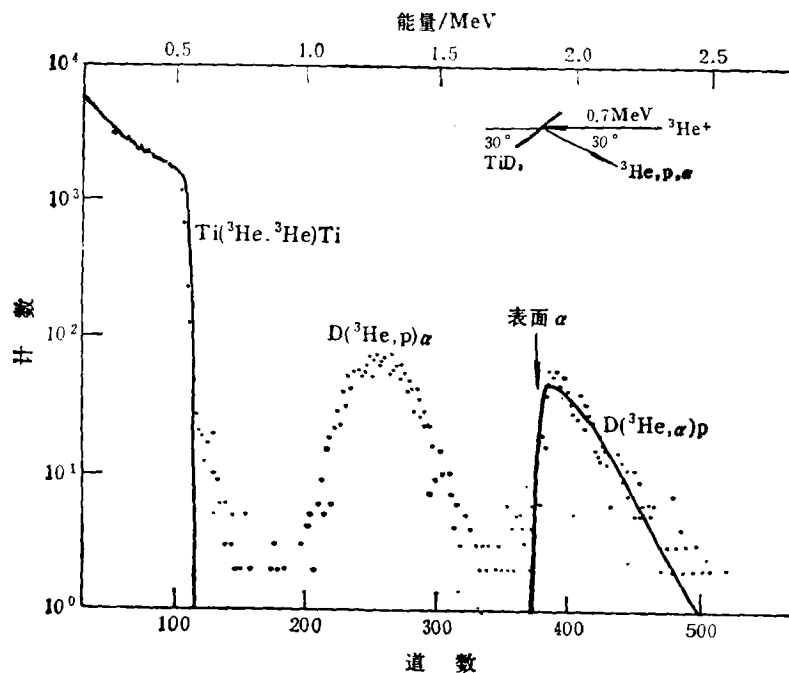


图1 NRA 分析 TiD_x 样品中 D 含量的能谱实线为 SENRAS 模拟谱

中 D 的原子浓度, α 是样品表面法向与入射束的夹角, θ 是探测角度, Ω 是指探测器所张的立体角 $d\sigma/d\Omega$ 为微分反应截面, 下标的 L 代表物理量取实验室系的数值 Yarnell 等

的 $^3\text{He}(\text{d}, \text{p})^4\text{He}$ 角分布实验证明了 $\text{D} \rightarrow ^3\text{He}$ 反应在 978 keV 以下主要由 S 波起作用, 质心系中反应截面各向同性假设引起的误差在 5% 之内^[4], 这一假设同样适用于相应能区内的 $^3\text{He} \rightarrow \text{D}$ 反应因而 $\text{D}(^3\text{He}, \alpha)\text{p}$ 的截面数据可从 $\text{D}(^3\text{He}, \text{p})\alpha$ 在 $\theta = 150^\circ$ 的截面值^[5]中推算出。

至于从第 i 层出射的 α 能量可由 Ziegler 等的 dE/dX 拟合公式计算^[6]。数据处理时, 上述理论计算是由核反应模拟程序 SENRAS 完成^[7]。调节 X 值使图 1 所示的模拟谱与实验测量谱很好地符合, 由此确定 TiD_x 的 $X = 1.70 \pm 0.15$, 这与我们用 PDBS 和 ERD 对同一样品的测量结果是一致的。

2.2 探测器灵敏层厚度测量

实验时在探测器前加一 0.292 mm 的 Ta 吸收片, 使得核反应产生的质子能量减小到 6 MeV 附近, 其射程与探测器灵敏区厚度 d_s 相当。固定偏压, 通过改变探测角度 θ 以获得不同中心能量(能谱峰顶)的质子(由核反应运动学 Q 方程知道, 反应产生的质子能量随 θ 角变化)随着 θ 的减小, 穿过 Ta 片的质子能量逐渐升高, 当质子能量全部耗尽(不能穿透)在灵敏层时, 测到的质子能谱的峰位逐渐向高道数方向移动; 当其能穿透灵敏区时, 由于在此能区质子阻止本领随能量单调递减, 所以测到的 ΔE 谱的峰位转为向低能方向移动。选取合适的灵敏区厚度就能使理论计算的质子峰位同实验值符合。由于逆向运动学因素及 $\text{D}-^3\text{He}$ 反应截面的峰值并不出现在样品表面, 所以穿过 Ta 片后的质子峰位能量比表面出射的质子要低或高出 0.1—0.2 MeV。图 2 是理论与实验结果的比较, 其中理论值是先由 SENRAS 得到穿过 Ta 片后的质子能谱, 再由 dE/dX 公式计算相应的测量

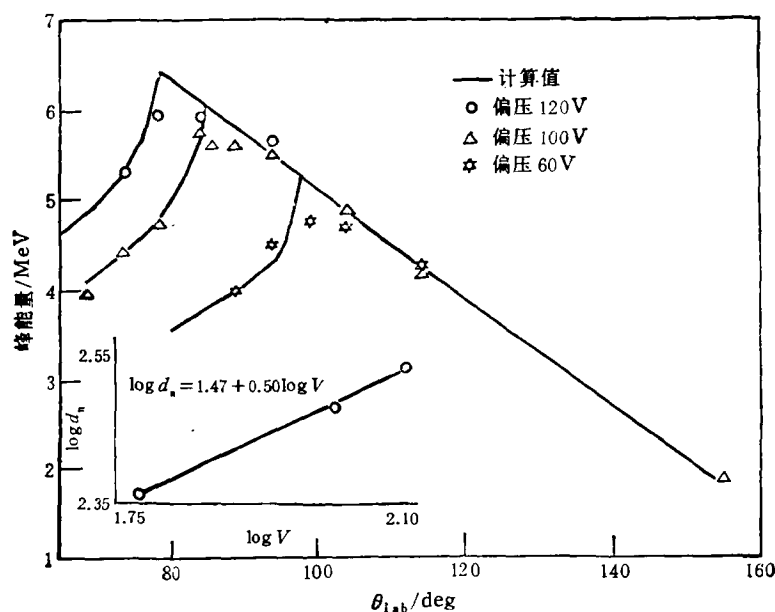


图2 不同偏压下质子峰位能量同角度的关系图

谱中的质子峰位三组结果中, 理论计算在转折点附近都系统地偏高, 其原因将在下一部分

讨论. 计算得到实验所用的 Au/Si 探头在 120V, 100V 和 60V 偏压下的灵敏层厚度分别为 328, 295 及 231 μm . 探测器理论认为 pn 结探测器的灵敏区厚度 d_n 与半导体材料的电阻率 ρ_n 和外加偏压 V 的平方根成正比^[8]

$$d_n \approx 0.53(\rho_n V)^{1/2} \mu\text{m}. \quad (2)$$

因此将三组 $\log(d_n)$, $\log(V)$ 数值直线拟合可求出 ρ_n , 结果绘在图 2 的小插图中. 最后得到该探头的电阻率为 $(3.10 \pm 0.64) \times 10^3 \Omega \cdot \text{cm}$.

2.3 质子谱的模拟

反应产生的能量在 13MeV 附近的质子在 Si 中的能量损失截面受其能量影响甚微, 因而半高宽 $\text{FWHM} \approx 300\text{keV}$ 的反应质子在探测器灵敏层内几乎损失相同的能量, dE/dX 理论计算给出质子能损谱(下称 ΔE 谱)的 $\text{FWHM} \approx 30\text{keV}$ 与图 1 中实际值 320 keV 相差很大. 我们认为, 这是由于 Au/Si 探测器在灵敏区的末端电场很弱, 造成高能量的质子在此区域激发出的电子空穴对的漂移速度缓慢, 这样就引起部分的电子空穴复合及捕获, 考虑到复合及捕获的过程是受统计涨落规律的支配, 所以单能入射质子在探测器上输出的响应能谱也有很大的展宽. 由于高能时质子的 dE/dX 相差无几, 所以在以下的理论计算中就把图 1 中的质子 ΔE 谱作为单能质子在半导体探测器中的响应函数 $G(E-\Delta E)$, 它将造成测到的 ΔE 谱有所展宽.

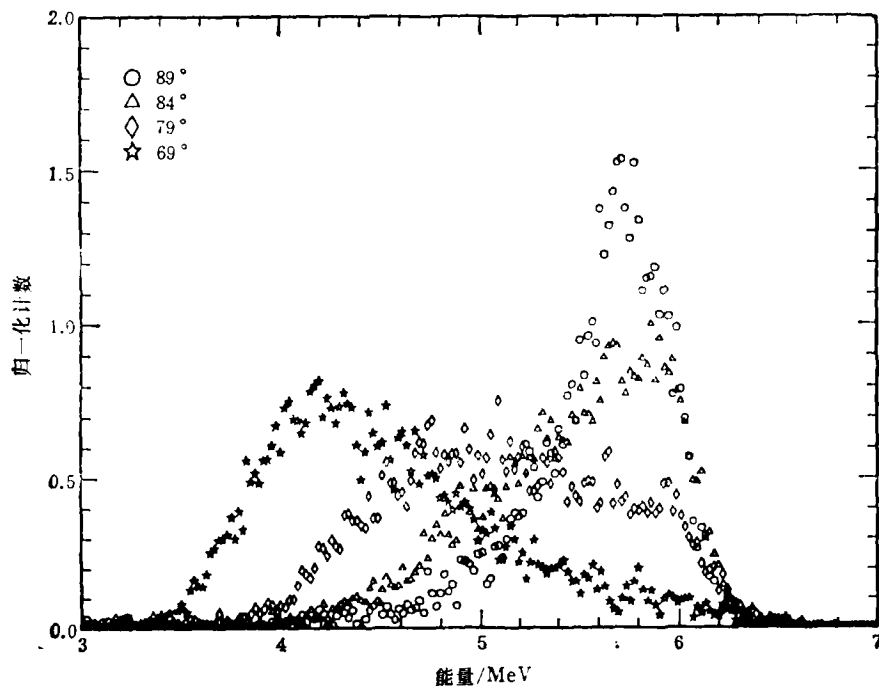


图 3 在临界能量附近不同角度下的质子谱, 图中曲线是为了视觉的方便

实验时观察到不同角度下的质子谱不仅峰位不同, 而且其形状也出现了有规律的变化(图 3). 随探测角度的增加, 质子谱从拖带一高能尾谱的单峰变化到出现双峰结构, 最

后又过渡到一带低能尾谱的单峰,并且在中间区谱形可能展宽一倍以上,该现象可以由入射质子的能量分布来解释:如图4所示,在入射质子射程与灵敏区厚度相当时,部分低能质子能量完全损失,贡献了能量谱 Y_I ,另一部分高能质子只贡献 ΔE 谱 Y_{II} ,两种不同机制的能谱迭加就可使总能谱 Y 呈现不同的谱形。

设穿透 Ta 片后的质子能谱谱高为 $f(E-E_0)$, E_0 是质子的中心能量,计算中 f 采用 SENRAS 的模拟谱,若用 δE 表示多道分析器道宽, E_c 表示射程等于灵敏区厚度的临界质子能量, $\Delta E(E)$ 代表能量为 E 的质子在某一偏压下的能损函数,它可由文献[6]中公式计算由于同一 ΔE 值同时对应 $E > E_c$ 和 $E < E_c$ 两种情形,能量损失谱谱高由两部分质子的贡献组成

$$\begin{aligned} Y(\Delta E) &= Y_I(\Delta E) + Y_{II}(\Delta E) \\ &= \int_{\Delta E-1/2\delta E}^{\Delta E+1/2\delta E} \frac{f(E-E_0)}{|\Delta E'(E)|} d\Delta E \Big|_{E < E_c} \\ &\quad + \int_{\Delta E-1/2\delta E}^{\Delta E+1/2\delta E} \frac{f(E-E_0)}{|\Delta E'(E)|} d\Delta E \Big|_{E > E_c} \end{aligned} \quad (3)$$

计入前面提及的探测器内的统计涨落因素,实际测得谱应为

$$Y(E') = Y(\Delta E) \otimes G(E' - \Delta E) = \int_{-\infty}^{+\infty} Y(\Delta E) G(E' - \Delta E) d\Delta E. \quad (4)$$

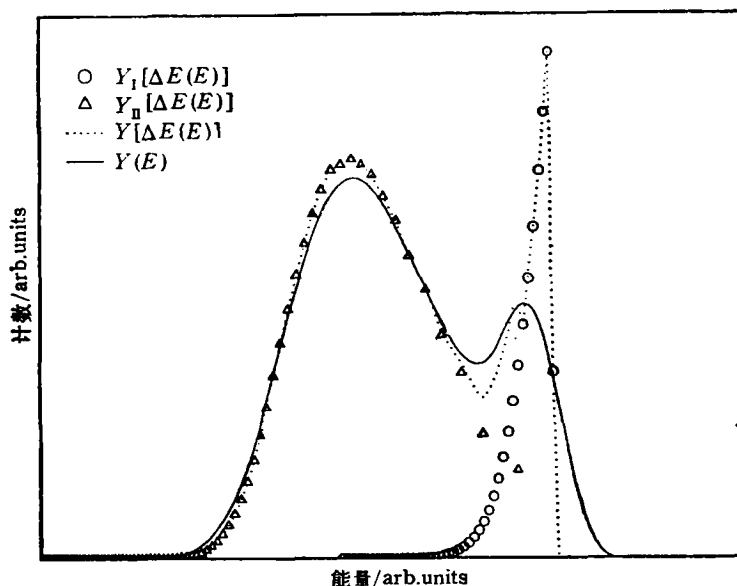


图4 入射质子中能量大于 E_c 与小于 E_c 部分的贡献能谱及最后测得的总谱的计算曲线

图5给出与图3对应的理论计算谱,由此可见理论能很好解释实验的观测,另外注意到理论谱比实验结果窄,这是由于在此质子入射能下,质子 dE/dX 最大的区域,也就是激发电子空穴对最多的区域,正好落在灵敏区末端,因此在弱电场区集中较高的电子空穴对密度从而放大了统计涨落的影响,这等价于要求使用比 G 更宽的响应函数才能更好地

描述该探测系统。图 5 中的实心圆点指出了相应条件下的质子中心能量所对应的 ΔE 位置,

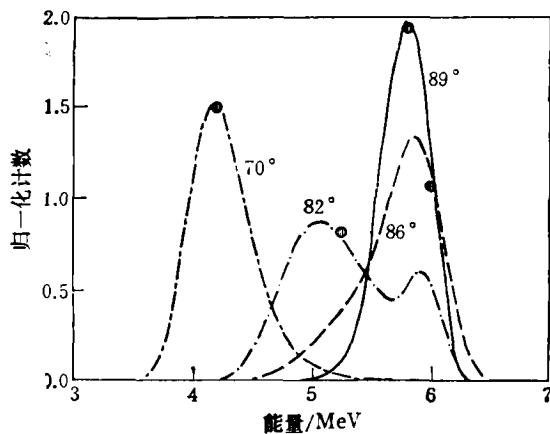


图 5 理论计算的不同角度下的质子谱

由此就解释了由入射质子的非单色性引起图 2 中理论计算在转折区偏高的现象。

总结如下, $D-^3He$ 核反应在背向探测几何下有逆向运动学效应, 本文利用 SENRAS 程序和根据反应各向同性假设求出的截面曲线得到了很好的模拟谱, 确定了中子管用 TiD_x 靶的 D 成分 $x = 1.7$. Lenard 和 Bauer 等研究了 Si 探测器对不同入射离子的响应, 但那里电子空穴对是处于强电场中, 可以忽略复合和捕获的统计因素^[9,10], 我

们在此则研究了弱电场下 Si 探测器对高能质子的响应结果表明对 $^3He \rightarrow D$ 反应产生的能量高达 13—16 MeV 的质子, 用通常的 Au/Si 面垒探测器仅能得到其 ΔE 谱, 必须计入灵敏区末端的电子空穴对复合和捕获的统计涨落因素, 才能较好地模拟实验谱。当入射质子射程在灵敏区厚度附近时, 质子的非单色性还会使能谱呈现新的形状。这些结果将有助于高能质子 ΔE 谱的计算机模拟, 从而达到从测量的质子谱获取样品内深层 D 浓度分布信息的目的。

- [1] J. Böttiger, On Depth Profiling of Hydrogen and Helium Isotopes and Its Application to Ion-Implantation Studies. Ph. D Thesis. University of Aarhus, Denmark, 1979; *J. Nucl. Mater.*, **78**(1978), 161.
- [2] J. M. Mayer, E. Rimini, Ion Beam Handbook for Material Analysis (Academic Press, 1977), p. 275.
- [3] W. N. Lenard, G. R. Massoumi, P. F. A. Alkemade, I. V. Mitchell, N. S. McIntyre and R. D. Davidson, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B73**(1993), 203.
- [4] J. L. Yarnell, R. H. Lovberg and W. R. Stratton, *Phy. Rev.*, **90**(1953), 292.
- [5] C. J. Alstetter, R. Behrisch, J. Böttiger, F. Pohl and B. M. U. Scherzer, *Nucl. Instr. and Meth.*, **149**(1978), 59.
- [6] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, The Stoppings and Ranges of Ions in Matter, Vol. 1(Pergamon Press, New York, 1985).
- [7] G. Vizkelethy, *Nucl. Instr. and Meth.*, **B45**(1990), 1.
- [8] G. Dearnaley and D. C. Northrop, Semiconductor Counters for Nuclear Radiation (E. and F. N. SPON Limited, 1963).
- [9] W. N. Lenard and K. B. Winterbon, *Nucl. Instr. and Meth.*, **A248**(1986), 454.
- [10] P. Bauer and G. Bortels, *Nucl. Instr. and Meth.*, **A299**(1990), 205.

ANALYSIS OF DEUTERIUM IN TITANIUM BY ${}^3\text{He}\rightarrow\text{D}$ NUCLEAR REACTION

ZHOU YING-YAO ZHAO GUO-QING ZHOU ZHU-YING XU WEI-DONG YANG FU-JIA
(*T. D. Lee Physics Laboratory, Fudan University, Shanghai 200433*)

LONG XING-GUI ZHAI GUO-LIANG LI HONG-FA YANG SHI-LI ZHAO PENG-JI
(*China Academy of Engineering Physics, Mianyang 610003*)
(Received 18 July 1994)

ABSTRACT

The concentration of D in a TiD_x target used in the neutron generator is analyzed by ${}^3\text{He}\rightarrow\text{D}$ reaction. With the acquired proton spectra, the depletion layer thicknesses of an Au/Si surface barrier detector are derived and its responses to high energy protons are also studied in detail. In the case of commensurate proton ranges with the depletion layer thicknesses, the calculated spectra are consistent with experimental phenomena.

PACC: 2555