

基于新型金属氘化物电极的真空弧离子源性能研究

吕会议¹ 王 韬² 杨 振³ 董晨阳¹ 徐浩博¹ 董 攀²

1(西南科技大学 国防科技学院 绵阳 621010)

2(中国工程物理研究院 流体物理研究所 绵阳 621900)

3(中山大学 中法核工程与技术学院 珠海 519082)

摘要 采用金属氘化物电极的真空弧离子源,可产生强流氘离子束,在中子发生器、强流加速器等领域有着广泛的应用前景。本文针对一种新型金属氘化物材料($Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_x$),研究了基于该材料制作的电极源片,及其表面状态和晶体结构,并通过磁质谱分析方法研究了采用该电极源片的真空弧离子源放电性能。研究结果表明:这种新型金属氘化物材料吸氘(金属氘原子比约1:(1.6~1.7))前后体胀约18%,表面无宏观裂纹;微观下存在微细裂纹,裂纹宽度均小于100 nm。离子源放电获得的氘离子成分比例较普通氧化钛电极情况稳定性高。另外,随着放电电流的增加,氘离子比例有所下降,表明大放电弧流下,源片中低熔点的铜元素气化量增大,降低了氘原子的电离效率。本文研究为基于金属氘化物电极的真空弧离子源电极材料选择提供了一种新的选择。

关键词 真空弧离子源, 金属氘化物电极, 磁质谱, 氘离子比例

中图分类号 TL503.4

DOI: 10.11889/j.0253-3219.2020.hjs.43.060201

Study of vacuum arc ion source based on a novel alloy deuteride cathode

LYU Huiyi¹ WANG Tao² YANG Zhen³ DONG Chenyang¹ XU Haobo¹ DONG Pan²

1(School of National Defense Science and Technology, Southwest University of Science and Technology, Mianyang 621010, China)

2(Institute of Fluid Physics, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China)

3(Sino-French Institute of Nuclear Engineering and Technology, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519082, China)

Abstract [Background] The vacuum arc ion source with metal deuteride electrodes can generate high current deuterium ion beam, hence can be widely used in neutron generators, high-intensity accelerators and other fields. [Purpose] This study aims to introduce a novel alloy deuteride electrode ($Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_x$). [Methods] The novel alloy material was made by vacuum levitation melting with Ti, Zr, and Cu. The deuteride electrode ($Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_x$) was made in a high temperature deuteration apparatus. The material properties of the electrode and the discharge of the vacuum arc ion source were analyzed. In addition, composition of deuterium alloy cathode produced by vacuum arc discharge was analyzed by the magnetic analysis technology. The stability of the deuterium composition was compared with the traditional titanium deuteride electrode ion source. [Results] The volume expansion of the novel

国家自然科学基金(No.11505147)、四川省教育厅项目(No.16zd1143)资助

第一作者: 吕会议, 男, 1970年出生, 2010年于兰州大学获博士学位, 从事中子源技术、束靶相互作用研究

通信作者: 杨振, E-mail: yangzhcaep@163.com

收稿日期: 2019-12-30, 修回日期: 2020-04-26

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.11505147), Sichuan Education Department Project (No.16zd1143)

First author: LYU Huiyi, male, born in 1970, graduated from Lanzhou University with a doctoral degree in 2010, focusing on the neutron source technology and beam target interaction

Corresponding author: YANG Zhen, E-mail: yangzhcaep@163.com

Received date: 2019-12-30, revised date: 2020-04-26

alloy deuteride (MD_x , $x=1.6\sim 1.7$) is about 18%. Macroscopic crack on the surface of the alloy deuteride is found by naked eyes while some micro cracks can be seen by the scanning electron microscope (SEM). The size of the micro cracks is less than 100 nm. **[Conclusions]** The novel alloy deuteride electrode ($\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.5}\text{Cu}_{0.05}\text{D}_x$) is a good candidate for the vacuum arc ion source.

Key words Vacuum arc ion source, Alloy deuteride electrode, Magnetic analysis, Deuteron composition

真空弧放电因能产生强流金属离子束或者金属气体混合离子束,而被广泛应用于材料表面改性、半导体掺杂及高能物理研究用粒子加速器等领域^[1]。金属氘化物,如氘化钛、氘化锆等一元金属氘化物以及合金氘化物替代普通金属电极用作真空弧离子源的阴极,在电极之间放电过程中,将产生强流氘离子和各价态金属离子,这在中子发生器、强流加速器领域具有广泛的研究和应用前景。真空弧放电的显著特点是在阴极表面阴极斑处,快速地发生阴极材料由固态向气态,以及等离体态的相位转变,在这个过程中阴极斑区域将会发生强烈的热力学行为变化,因此要求金属氘化物电极材料具有好的力学性能和热稳定性。同时,为了提高氘离子的比例,通常采用高氘原子比的金属氘化物,如氘与金属原子数比例接近2:1。氘化钛作为一种固态储氢材料,在常温常压下具有极高的氢密度,是一种最常见的金属氘化物电极材料,在过去的30年间,氘化钛材料在真空弧离子源领域得到了广泛的应用,并开展了大量的研究^[2-11]。然而由于氘化物材料本身存在氢脆效应,基于氘化钛材料的电极源片易产生肉眼可见的宏观裂纹,会严重影响到离子源放电的稳定性。在大弧流放电时更易发生电极源片表面大面积喷裂、脱落等现象,在影响放电稳定性的同时也大大降低了电极源片的使用寿命。本文针对一种新型金属氘化物材料($\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.5}\text{Cu}_{0.05}\text{D}_x$)开展研究,在实现高吸氘比的前提下,该类材料电极具有较好的力学性能,同时具备较优良的放电稳定性,其对真空弧离子源性能的提升具有重要的意义。

1 实验方法

该锆钛铜合金材料制备选用英国供应商Goodfellow的Ti006100纯钛颗粒、ZR006100纯锆颗粒和CU006100纯铜颗粒作为原料,利用真空悬浮炉熔炼。炉内的背景真空度优于 1×10^{-2} Pa,并以高纯氩气充至0.05 MPa。熔炼过程中施以磁力搅拌,每个锭翻炼两遍后缓慢降温。通过加工处理后得到锆钛铜合金电极,并在高温吸氘平台上实现电极的氘化饱和。之后通过称量法得到该氘化锆钛铜合金电极的氘原子与金属原子比在1.6~1.7之间,体涨约18%。

采用扫描电子显微镜(Scanning Electron Microscope, SEM)开展了电极样品的表面形貌分析。采用X'Pert PRO型X射线衍射仪(X-ray Diffraction, XRD)开展了样品的晶体结构分析。X射线谱线采用铜的 K_α 线,其特征波长 $\lambda=0.154\,059\,8\text{ nm}$,扫描步长 0.02° ,每个测试角度的数据记录时间为1 s,扫描范围为 $20^\circ\sim 70^\circ$ 。

利用自研的磁质谱分析系统^[12-13],开展了基于金属氘化物电极真空离子源的氘离子比例测量工作。图1为该磁质谱分析平台的实验布局图。离子源采用径向沿面放电模式,在含氘阴极与不锈钢阳极之间通过真空弧放电产生等离子体,通过20 kV的脉冲高压将等离子体中的阳离子引出并通过磁场偏转进行区分和收集。该平台可分辨 H^+ 、 D^+ 和金属离子,通过示波器可分别测量三路信号。实验中离子信号探测器后端均采用 $400\,\Omega$ 的接地电阻作为取样电阻,这样可保证三路探测器放大倍率一致,即测得的离子信号波形的面积与离子束流强度成正比,由此可定义:束流中氘离子比例($\text{D}\%$)为氘离子波形面积(S_D)除以氘离子波形面积和金属离子波形面积之和(S_D+S_M)。

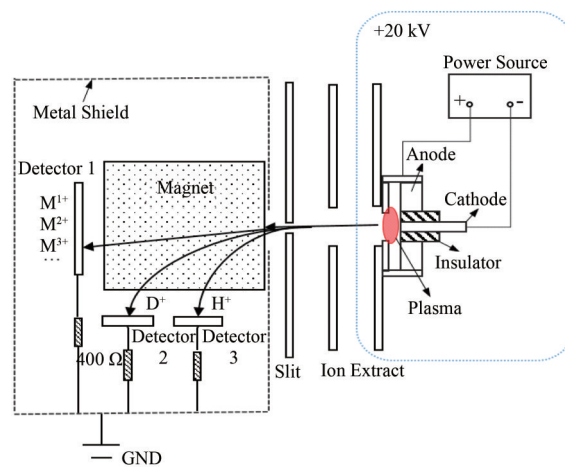


图1 磁质谱分析平台实验布局图

Fig.1 Experimental layout of a magnetic mass spectrometry

2 实验结果与讨论

图2给出了吸氘饱和后,氘与金属原子比约1.6

的氧化锆钛铜合金($Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$)电极的表面宏观图、表面介观图和表面微观图。从图2(a)可以看到, $Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$ 表面无肉眼可见的宏观裂纹。通过游标卡尺测量尺寸获得该锆钛铜合金源片饱和吸氘后体胀率约为18%。图2(b)为光学显微镜放大倍率约200倍时拍摄的表面介观图, 可以看到 $Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$ 表面存在少量微裂纹, 裂纹的宽度在亚微米量级。图2(c)为SEM 25 000倍放大倍率下, $Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$ 表面非裂纹区域的微观形貌图, 可以看到规则的晶粒密集排布, 晶界处堆积了一些点状颗粒物质, 判断为高温吸氘过程中析出的铜颗粒, 这是典型的第二相物质。分析认为吸氘过程中析出的第二相物质, 将有效地阻挡晶界处微裂纹的扩张, 从而提高 $Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$ 的断裂韧性。图2(d)为SEM 25 000倍放大倍率下, $Zr_{0.45}Ti_{0.5}Cu_{0.05}D_{1.6}$ 表面微裂纹区域的微观形貌图, 微裂纹的宽度均小于100 nm。这些微裂纹的产生, 是由于高温氧化过程中体胀效应引起的材料内应力释放所导致的, 同时这些微裂纹的存在一定程度上可有效降低裂纹的聚合效应, 避免大裂纹的形成。因此这种新型合金在吸氘饱和后仅存在部分亚微米量级的微裂纹(见图2(b))。

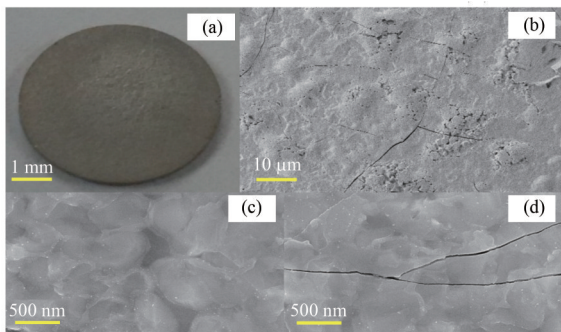


图2 氧化锆钛铜合金电极表面宏观图(a), 光学显微镜下的表面介观图(b)和SEM下的表面微观图(c, d)

Fig.2 The surface view of zirconium titanium copper alloy electrode

(a) Macro view, (b) Mesoscopic surface under light microscope, (c, d) The micrograph under scanning electron microscope

图3给出了锆钛铜合金和氧化锆钛铜合金的XRD图谱。从图3中显示的衍射峰可以看到, 锆钛铜合金是由密排六方结构的 α 相组成, 但合金内仍存在独立的 α -Ti、 α -Zr和微弱的Cu信号。除此之外, 由于加工过程中不可避免地引入的表面氧化, 可以明显地看到 ZrO_2 和 TiO_2 的谱线。高温吸氘过程, 将使晶体结构发生显著的变化。首先在高温和高真空环境下, 样品表面氧化层将发生龟裂, 此时通入还原性气体氘气, 使得表面氧化层发生还原反应, 从

XRD图谱上可以看到, 吸氘后的锆钛铜合金中 ZrO_2 和 TiO_2 的谱线消失。其次, 氘气吸附在合金表面, 以原子形式向合金内部扩散, 并与合金中的锆和钛发生氢化反应, 而形成fcc结构的金属氘化物相, 包括 ZrD_x 和 TiD_x 。同时, 氧化锆钛铜合金中的铜信号变得更加的微弱, 分析认为氧化过程促使合金制备过程中形成的较大铜颗粒转变为铜的纳米晶, 并且在合金中形成弥散分布, 这一结论在图2(c)和2(d)中也得到了证实。

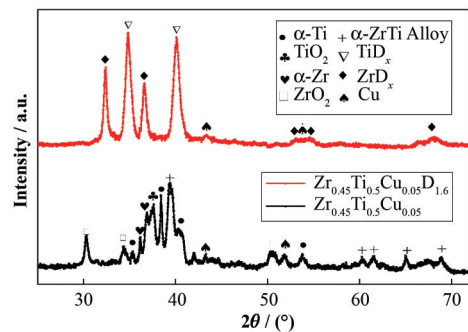


图3 锆钛铜合金和氧化锆钛铜合金的X射线衍射图谱
Fig.3 X-ray diffraction patterns of zirconium titanium copper alloy and its deuteride

将这种新型锆钛铜合金源片加工成离子源电极并吸氘饱和后, 开展真空弧离子源放电的磁质谱分析测试。同时, 为了便于对比分析, 在相同的实验条件下, 也开展了基于传统的 $TiD_{1.6}$ 阴极离子源的测试。

图4给出了磁质谱分析平台上得到的典型离子成分测试信号。实验测试过程中发现: 在放电测试初期, 束流中存在明显的 H^+ 信号, 这可能是样品制备过程中真空环境不可避免地存在水蒸气及安装过程中有机物被电极吸附所致。随着放电次数的增加, H^+ 的比例逐渐下降, 经过足够多的放电次数后, H^+ 的比例会下降到很低的水平, 可以忽略不计, 此时束流成分主要为 D^+ 和金属离子(M^{n+})。

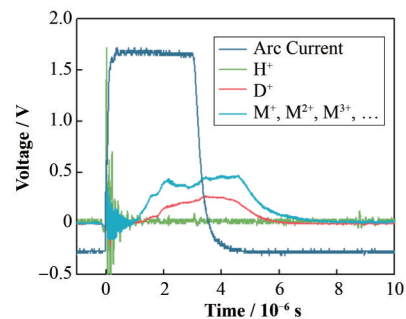


图4 磁质谱分析平台得到的 H^+ 、 D^+ 和金属离子典型信号
Fig.4 Typical signals of H^+ , D^+ and metal ions from magnetic mass spectrometry analysis platform

图5给出了相同结构及实验条件下真空弧离子源分别采用 $\text{TiD}_{1.6}$ 阴极和 $\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.5}\text{Cu}_{0.05}\text{D}_{1.6}$ 阴极,其放电产生的氘离子比例实验测量结果。每一组实验(No.x)在0.3 Hz频率下连续放电100次,氘离子比例为100次放电所测得数据的加权平均值。误差棒表示每组实验中,每次氘离子比例的均方根误差。实验结果表明:采用氧化锆钛铜合金阴极的真空弧离子源,其放电的氘离子比例稳定性远高于采用氧化钛阴极的情况。研究认为这是由于氧化锆钛铜合金阴极表面没有显著的宏观裂纹,而微观裂纹尺度均在亚微米量级,这在一定程度上提高了每次放电的均匀性和稳定性;而氧化钛阴极的表面存在微米甚至几十微米的裂纹,使得每次放电均匀性较难保证。

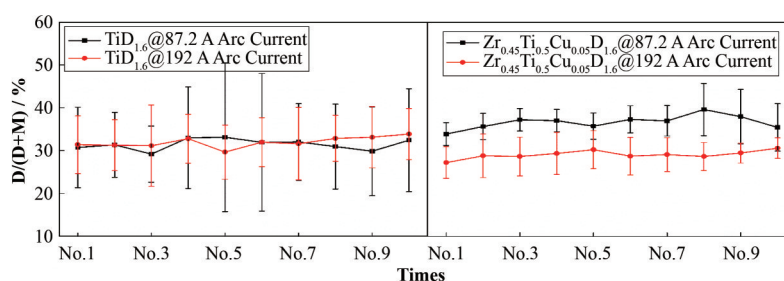


图5 真空弧离子源分别采用氧化钛和氧化锆钛铜阴极的氘离子比例结果

Fig.5 The results of deuterium ion ratio in vacuum arc ion source using deuterium titanium and zirconium titanium copper as cathode, respectively

3 结语

金属氧化物材料作为离子源的电极材料,广泛应用于强流脉冲中子发生器中,其性能的优劣直接影响到中子发生器的性能。本文针对一种新型金属氧化物电极材料($\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.5}\text{Cu}_{0.05}\text{D}_x$),开展了饱和吸氘后材料表面形貌及晶体结构测试分析,并将其应用于真空弧离子源放电性能的研究。研究结果表明:在实现高吸氘比(金属氘原子比1:(1.6~1.7))的前提下,该材料体胀约为18%,表面无宏观裂纹,微观下存在少量小于100 nm宽度的微细裂纹,其力学性能良好。基于该电极材料的真空弧离子源较传统的氧化钛电极,可以在相对低的放电弧流下获得等量但更加稳定的氘离子比例。这一结果与氧化锆钛铜合金阴极表面无宏观裂纹,且微观裂纹数量和尺度均很低有直接关系。本文研究结果对后续氧化锆钛铜合金($\text{Zr}_{0.45}\text{Ti}_{0.5}\text{Cu}_{0.05}\text{D}_x$)材料在强流脉冲中子发生器上的实际应用具有重要的意义和价值。

参考文献

- Oks E M, Brown I G. The physics and technology of ion
- Logatchev A A, Afanas'Ev V P, Shkol'Nik S M, *et al.* The behavior of vacuum arc discharges on hydrogen impregnated electrodes[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 1999, 27(4): 894-900. DOI: 10.1109/27.782256.
- Savkin K P, Frolova V P, Nikolaev A G, *et al.* Mass-to-charge state of vacuum arc plasma with a film-coated composite cathode[J]. IEEE Transactions on Plasma Science, 2015, 43(8): 2318-2322. DOI: 10.1109/tps.2015.2438313.
- Savkin K P, Frolova V P, Nikolaev A G, *et al.* Lifetime of hydrogenated composite cathodes in a vacuum arc ion source[J]. Review of Scientific Instruments, 2016, 87(2): 02A904. DOI: 10.1063/1.4932382.
- Lan C H, Long J D, Zheng L, *et al.* Numerical study on ion filtering of titanium hydride cathodic vacuum arc plasma through a double-layer extraction grid[J]. Plasma Sources Science and Technology, 2017, 26(6): 065001. DOI: 10.1088/1361-6595/aa6710.
- 杨振, 龙继东, 蓝朝晖, 等. 离子源及厚靶参数对氘氙反

source[M]. Weinheim, Germany: Wiley, 2004.

- 应中子源中子产额的影响[J]. 核技术, 2012, **35**(8): 591–595.
- YANG Zhen, LONG Jidong, LAN Zhaohui, *et al.* Effects of ion source and target thickness on neutron yield from deuterium-tritium reaction neutron source[J]. Nuclear Techniques, 2012, **35**(8): 591–595.
- 7 郑乐, 蓝朝晖, 龙继东, 等. 真空弧离子源的电阻触发工作方式[J]. 核技术, 2014, **37**(1): 010202. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.010202.

ZHENG Le, LAN Zhaohui, LONG Jidong, *et al.* Method of triggering the vacuum arc ion source with a resistor[J]. Nuclear Techniques, 2014, **37**(1): 010202. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2014.hjs.37.010202.

 - 8 年瑞雪, 景士伟. 中子管靶材料对中子输出和溅射产额的影响[J]. 核技术, 2018, **41**(8): 080201. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.080201.

NIAN Ruixue, JING Shiwei. Impact of the target materials on neutron output and sputtering yield of the neutron tube[J]. Nuclear Techniques, 2018, **41**(8): 080201. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2018.hjs.41.080201.

 - 9 Huang Z W, Bai X H, Liu C Q, *et al.* Study on secondary electron suppression in compact D-D neutron generator [J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, **30**(5): 86. DOI: 10.1007/s41365-019-0596-0.
 - 10 Metwally W A, El-Sayed S, Ababneh A, *et al.* Flux measurements for a DD neutron generator using neutron activation analysis[J]. Nuclear Science and Techniques, 2018, **29**(4): 52. DOI: 10.1007/s41365-018-0385-1.
 - 11 Xu S W, Song Y T, Chen G, *et al.* Design and testing of an internal hot-cathode-type PIG ion source for superconducting cyclotron[J]. Nuclear Science and Techniques, 2019, **30**(6): 88. DOI: 10.1007/s41365-019-0613-3.
 - 12 郑乐, 龙继东, 董攀, 等. 基于磁偏转的真空弧离子源成分诊断[J]. 核技术, 2016, **39**(9): 090204. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.090204.

ZHENG Le, LONG Jidong, DONG Pan, *et al.* Study on ion species of vacuum arc ion source with analysis of magnetic[J]. Nuclear Techniques, 2016, **39**(9): 090204. DOI: 10.11889/j.0253-3219.2016.hjs.39.090204.

 - 13 Wang X H, Tuo X G, Yang Z, *et al.* Scintillation screen applications in a vacuum arc ion source with composite hydride cathode[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2018, **890**: 102–107. DOI: 10.1016/j.nima.2018.02.021.