·研究堆应用技术专题•综述·

锕系核靶制备与应用

何 遥, 李 刚, 陈琪萍, 胡 睿, 邓 建, 杨宇川, 涂 俊, 彭述明 (中国工程物理研究院核物理与化学研究所,四川编阳 621900)

摘 要: 基础核物理、核能开发、超重元素研制等领域对精确、值得信赖的核参数的需求日益增大,锕系 核靶作为核数据测量实验的核心部件,其产品种类及关键质量参数的优劣直接制约核数据测量的发展水平。 系统介绍了国内外锕系核靶制备及检测方法以及国内外核靶研究团队技术储备及发展方向。

关键词: 锕系核靶;分子镀;真空蒸镀;核参数;核能开发

中图分类号: O571.3; TL31 文献标志码: A doi: 10.11884/HPLPB202234.210507

Actinide nuclear targets preparation and applications

He Yao, Li Gang, Chen Qiping, Hu Rui, Deng Jian, Yang Yuchuan, Tu Jun, Peng Shuming (Institute of Nuclear Physics and Chemistry, CAEP, Mianyang 621900, China)

Abstract: There is an increasing demand on precise, accurate and reliable experimental nuclear data in various scientific research fields like basic nuclear physics, nuclear energy, super-heavy element research and others. Actinide targets are composed of a thin-layer, pure actinide compound deposited on a certain metal foil. Acting as the stationary nuclei sources in nuclear reactions, high-quality actinide targets are essential for the uncertainty of the measured nuclear data and ensure the success of the relative experiments. In this review, the preparation methods of actinide nuclear targets, the development of organizations of nuclear targets, and the outlook are discussed.

Key words: actinide nuclear targets, molecular plating, vacuum evaporation, nuclear data, nuclear energy research

过去 20 年,核天体物理学、基础核物理、核能开发、核医药、超重元素研制等领域对精确、值得信赖的核参数 的需求日益增大¹¹。核靶作为核数据研究与测量的核心部件,是指将特定种类的单质或化合物加载在特定的基材 上形成的靶件。核靶接受粒子轰击产生大量碎片信息,通过物理探测系统探测并记录下来,使用先进的数据处理 分析方法获得目标核的核反应截面等参数。

锕系核靶是核数据研究与测量中使用最为广泛且最为特殊的核靶类型(包含 U, Th 以及 Np, Pu, Am, Cm, Bk, Cf 等重锕系元素^[2]),在核靶研制领域受到了大量的关注。其应用主要集中在基础核物理数据研究、超重元素研制 及核能开发三部分。M. B. Chadwick 等报道 CIELO(The Collaborative International Evaluation Library Organization)项目联合洛斯阿拉莫斯国家实验室(LANL)、欧洲核子中心(CERN)、欧洲联合中心(JRC)等通过制备²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁹Pu 等靶件获得了^{235,238}U, ²³⁹Pu 裂变截面和俘获截面等基础核物理数据^[3]。J. B. Roberto 等报道通过强重离子束流 (⁴⁸Ca)轰击²⁴²Pu, ²⁴⁴Pu, ²⁴³Am, ²⁴⁵Cm, ²⁴⁸Cm, ²⁴⁹Cf, 以及²⁴⁹Bk 等重锕系靶,得到了元素序号 113~118 的 6 种新元素^[4]。 法国原子能委员会(CEA)制备微型圆筒²³⁵U 靶件作为核心功能部件,开发了多种核仪表系统供应核电站使用^[5]。

不同的物理测量实验对核靶制备的关键指标(靶件厚度、均匀性、牢固性、材料利用率等)提出了不同的要求。在高精度裂变截面的测量中,核数据的不确定度不仅取决于物理实验测量方式和数据分析手段,同时取决于核靶的不均匀性等参数,如不均匀性通过影响靶件核子数与束流强度积分的空间分布 ($\int \varphi_{t(x,y)}\varphi_{n(x,y)}$), 靶件自吸收因子不确定度影响参数测量的准确性。通过重离子诱发的熔合反应合成超重新元素和产生丰中子超重核等研究中,



 ^{*} 收稿日期:2021-11-20; 修订日期:2022-03-31
 基金项目:四川省科技计划资助项目 (2020ZDZX0027)
 联系方式:何 遥, heyao13@126.com。
 通信作者:彭述明, pengshuming@caep.cn。

精细实验要求反应靶具有极高平整度和均匀度,强流实验要求靶件能够耐受高功率束流轰击,同时由于合成 118号以上的新元素可用的重锕系元素靶材料(Cm, Bk, Cf, Es等)极为稀少,必须采用高效制靶技术⁶⁶。综上所述, 核数据研究、超重元素合成等前沿物理对锕系核靶制备技术提出了极高的要求,制备的靶件需要具备厚度可控、 均匀、牢固、环境适应性好、镀层化学成分纯等特点¹⁷⁰。

本文将系统阐述国内外在锕系核靶制备及检测方法上的发展现状,总结国内外核靶组织机构的分布及技术现状,并对我国未来核靶领域的发展做出展望。

1 核靶制备方法

锕系核靶的制备相较于非放射性核靶的制备要困难得多,主要原因在于:(1)锕系靶材料通常具有很强的α放 射性,导致制靶工艺复杂、操作受限;(2)锕系材料非常稀有且价格十分昂贵,使得制靶方法的选择受到了限制,例 如²⁵⁴Es 等核素,总量只有μg量级,无法被加工成金属靶材,只能采用电镀等方法制备。早在1960年,粉末压制、电 喷雾、电泳和滴涂等方法都曾被用作核靶制备^[8-9]。电喷雾方法是将锕系氧化分散于有机溶剂中制备成悬浊液,悬 浊液在高电压(3~20 kV)的作用下穿过狭窄的毛细管,沉积在导电基底上。该方法因其带来的锕系核素沾污较 大,同时溶剂会引入少量杂质而逐渐被其他方法替代。电镀和真空蒸镀是目前最为常用的锕系核靶制备方法,与 此同时聚合物辅助沉积、喷墨打印等新方法也在快速发展中。表1列举了几种常用方法的关键参数及优缺点。

method	mass thickness	efficiency/%	advantages	disadvantages
electro-spraying	mg/cm ²	80~90	high efficiency; homogeneity (2%~5%); simple equipment	impurities from solvent; thickness limitation
electro-deposition	$\mu g/cm^2 {\sim} mg/cm^2$	90~100	high efficiency; fast and simple; no cross contamination	impurities from solvent; deposits composition is unknown
vacuum evaporation	$\mu g/cm^2 \sim mg/cm^2$	5~10	the coating is smooth; the thickness homogeneity is high	low efficiency; time-consuming preparation of the material for evaporation; substrate is easily deformed by heat
magnetron sputtering	$\mu g/cm^2 {\sim} mg/cm^2$	20~40	the coating is smooth, strong adhesion of coating	big amount of the evaporated materials are required
polymer assisted deposition	µg/cm ²	80~90	simple, the coating is smooth	thickness limitation

表 1 不同核靶制备方法特点 Table 1 Characteristics of different nuclear target preparation methods

1.1 电镀

电镀方法具有简单、设备价格低、不易产生交叉污染、核素利用率高等优势,是目前使用最为广泛的锕系核靶制备方法。电镀是指将锕系核素溶解于溶剂(水、异丙醇等)中,采用两电极体系,底衬作为阴极,锕系核素移动到阴极表面得到电子,实现电化学还原从而沉积在底衬的过程。电镀主要分为水溶液电镀及有机体系电镀(分子镀),水溶液电镀在2005年前应用广泛,目前仍广泛应用于微量(Bq量级)锕系测量靶件的制备。例如,J.D.Baker等报道采用硫酸铵水溶液体系电镀完成了U,Pu靶件的制备,沉积效率在65%~90%之间^[10-12]。但水溶液电镀由于水的电化学窗口比较窄,水的还原电位较低,在电镀过程中水在阴极优先发生电化学还原反应而产生大量氢气,易导致镀层疏松等问题。而分子镀采用二甲基亚砜、异丙醇等有机溶剂,利用其较宽的电化学窗口,最大程度避免了气泡的产生,作为水溶液电镀法的"升级版",成为目前国内外核靶研制实验室的常规制备方法。

目前各实验室基于分子镀已发展出单面镀、双面镀、异形镀等电镀模式,实现了U,Th,Pu,Am等多种核素的 靶件的制备。如JRC-Geel采用竖直式的电镀槽设计,优化了铂丝阳极的形状及旋转方式,完成主要锕系核素(U, Pu,Np,Am)多种尺寸(100~5000 µg/cm²)圆形靶件的制备^[13]。美国LANLBond等^[14]报道利用分子镀实现双面铀靶 的制备,可显著增加单块靶件的铀总量。德国美因茨大学(JGU)将传统的垂直型电镀装置更改为水平型电镀装 置,完成了一系列"香蕉型"超铀靶件(如²⁴⁴Pu,²⁴⁸Cm,²⁴³Am,²⁴⁹Cf,²⁴⁹Bk等)的制备,单次电镀效率 90% 以上,镀层质 量厚度为 500~1000 µg/cm²。

分子镀制备的靶件均匀性在10%左右,镀层主要由锕系元素氧化物组成,由于在分子镀不同时期的电化学还 原过程中伴随着大量不同程度副反应,导致镀层并非单一的化学组成,通常随着镀层厚度的变化而变化^[15]。分子 镀核靶表面呈岛状结构,镀层表面存在许多裂纹^[16]。尽管分子镀在锕系核靶的制备上拥有巨大的优势,但靶件均 匀性与物理气相沉积相比存在较大差距,牢固性不佳,限制了其在高均匀性靶件、低质量厚度靶件上的应用。因 此近些年来研究者将分子镀研究聚焦在镀层质量的优化及镀层均匀性调控方向,并取得了长足进步^[17]。A.Vascon 等人探究了分子镀过程中底衬粗糙度、溶剂、电解质浓度、电流等关键因素对镀层质量的影响,发现低蒸气压溶 剂搭配粗糙度低的底衬能够得到光滑、无裂缝的镀层,由此实现了大面积²⁴²Pu 靶的制备^[18-19]。中国工程物理研究 院通过建立了铀在金属基底分子镀仿真模型(图 1),明确了转速、电极形状、极间距等关键因素对均匀性的影响, 结合工艺实验,成功将靶件(圆形底衬,质量厚度 200~300 μg/cm²)的不均匀性降低到 3%以下^[20]。





1.2 物理气相沉积(真空蒸镀、磁控溅射)

真空蒸镀是指在高真空环境中,采用一定的加热方式蒸发材料并使之气化,粒子飞至基片表面凝聚成膜的工艺方法。1978年,IRMM研究所将铀氧化物(U₃O₈熔点>2500℃)转化为熔点较低的氟化物(UF₄熔点1500℃),使聚合物膜等低熔点材料可作为衬底,极大扩宽了真空蒸镀方法在锕系核靶制备中的应用。目前,真空蒸镀制备锕系靶件的常用流程为在进行蒸镀前,先将U₃O₈等原料经过一系列化学反应转换成UF₄,而后利用UF₄为原材料进行蒸镀操作^[7],反应方程如下

$$U_{3}O_{8} + 6HCl \rightarrow 3UO_{2}Cl_{2} + H_{2} \uparrow$$
(1)

$$U(VI)O_2Cl_2 \cdot xH_2O + SnCl_2 \rightarrow U(VI)Cl_4 + Sn(OH)_2 \cdot yH_2O$$
(2)

$$UCl_4 + 4HF \rightarrow UF_4 \downarrow + 4HCl \tag{3}$$

真空蒸镀在制备靶件上优势非常明显,包括:

(1)该方法的底衬适应性好,加载的材料种类多。如表 2 所示,真空蒸镀可在金属或非金属(陶瓷基底、聚合物 基底)上沉积镀层,G. Sibbens等^[21]报道了在聚酰亚胺膜上利用真空蒸镀分别沉积²³⁵UF₄镀层(100 μg/cm²), ⁶LiF 镀 层(16 μg/cm²),以及 Au 镀层(43 μg/cm²),该靶件可用作高精度裂变碎片发射率的测量。同时真空蒸镀可用于高熔 点合金镀层的制备,如 U-Pu, V-U, Al-U 镀层的研制以及聚合物、小分子^[22]等其他材料镀层的制备。

	表 2	真空蒸镀方法适用的底衬种类
ole 2	Type o	f substrates suitable for vacuum evaporation

types of backing	material
metal	Al, Cu, Au, Ni, Ta, et al
	formvar ($[C_5H_8O_2]_n$),
polymer	mylar (PET polyethylene terephthalate ($[C_{10}H_8O_4]_n$),
	nylon (polyaMide [NH–(CH ₂) ₅ –CO] _n), VYNS (vinylit resin ([C ₆ H ₉ O ₂ Cl] _n), et al.
others	Si, Al_2O_3 , SiC, et al

(2)该方法制备的镀层表面光滑平整无裂缝,相较于分子镀方法,真空蒸镀过程中核素以确定化学形态(UF₄) 蒸发至底衬表面,镀层有确定的化学组成。真空蒸镀靶件的均匀性取决于靶材加热产生的蒸气流的分布,基底不 同部位蒸气流的强度差异会导致基底镀层分布的不均匀。通过增加蒸发源到基底的距离可提高蒸气流在底衬的 分布均匀性,从而将镀层不均匀性优化至2%以下。

材料利用率低及使用该设备的安全防护要求高是真空蒸镀方法应用于锕系核靶制备的最大限制,由于上述原因,真空蒸镀在锕系核靶制备的主要应用为制备质量厚度小于 300 μg/cm² 的U靶、Th靶,以补充分子镀在高均匀性靶件制备上的限制。研究团队尝试采用蒸发源-基底短距离蒸镀来提高真空蒸镀材料使用效率,但如上所述,短距离蒸发过程中基底蒸气流分布不均匀,针对该问题,Reynolds^[23]报道了在短距离蒸镀中,通过在腔室中心放置阻拦网调节蒸气流的分布,利用该方法实现了短距离、高材料利用率蒸镀(效率 90%),该方法的不均匀性为 10%。 Anna Stolarz等报道了采用多蒸发源调节底衬表面的蒸气流分布,实现蒸发源-底衬度短距离情况下高均匀性靶件制备^[24]。同时,为了克服锕系材料真空蒸镀对人员操作安全方面的限制,JRC-Geel团队改造研发了适用于放射性元素的物理气相沉积-真空蒸镀系统^[25],该系统通过设计合适的腔体尺寸及行星式样品转台平衡了真空蒸镀均匀性及材料利用效率的矛盾,通过设计合适的接口将腔体放入手套箱中,实现了大量U靶件的制备。该系统也为真空蒸镀方法制备超铀元素靶件提供了可能。

磁控溅射方法与真空蒸镀方法类似,磁控溅射方法在与靶平行的平面施加磁场,利用电场与磁场相互垂直的 磁控管原理减少电子对基板的轰击(降低基板温度),实现高速低温溅射^[26],与蒸发镀膜相比,磁控溅射具有高速、 低温、低损伤等特点。易泰民等报道了采用磁控溅射方法,制备低氧含量的单质金属铀薄膜,薄膜平整致密,表面 均方根粗糙度为 nm 量级^[27]。L.V. Drapchinsky 等^[28]报道了采用 RF 磁控溅射制备²³⁵U,²³⁸U 等锕系靶件用于裂变截 面的测量,效率可达到 40%,厚度不均匀性小于 1.5%。但磁控溅射对于靶材的要求较高,需要使用锕系金属芯体 或制备母体锕系靶件作为靶材,限制了其在 Am, Pu 等稀少核素上的应用。

1.3 聚合物辅助沉积、喷墨打印等制靶新方法

受到电子元器件领域高精度薄膜制备技术的启发, 近些年来, 核靶制备领域发展出了聚合物辅助沉积及喷墨 打印锕系核靶两类靶件制备新方法。聚合物辅助沉积技术于 2004 年首次报道^[29], 该方法利用聚合物与金属的相 互作用, 调配成特制的"聚合物螯合金属溶液", 墨水通过旋涂、涂刷、喷涂等手段均匀吸附在特定的基材表面, 最 后煅烧制备成金属氧化物、氮化物薄膜。2014年, LANL 利用含氮聚合物 PEI 对核素的螯合作用, 制备得到具有一 定粘度的前驱液体, 通过旋涂、靶件烧结, 得到了均匀, 纯净的铀氧化物、碳化物靶件, 靶件表面无裂痕, 呈现镜面 效果, 均匀性优异^[30]。美国伯克利国家实验室(LBNL)利用 PAD 结合旋涂法, 制备了 HfO₂, Eu₂O₃(用于分别模拟三 价、四价锕系核素)平面状及香蕉状靶件^[31]。聚合物辅助沉积可通过调节溶液中金属离子的浓度, 单次制备出厚 度 30 nm 到 320 nm 范围内的靶件, 但对于较厚的靶件(质量厚度 1 mg/cm²)需要 6 次及以上的旋涂、烧结操作, 限制 了它的应用范围^[32]。考虑到该方法旋涂过程的效率低且操作过程容易发生沾污, 目前该方法并未实际用于大量 U靶及其他锕系核素核靶的制备。

喷墨打印方法是通过将纳米粒子金属墨水或无颗粒金属墨水直接打印到特定基底上,通过煅烧等手段固化镀层,实现高精度、复杂化靶件制备的过程。早在 2014年,少数核靶制备团队就开始探索喷墨打印技术在核靶领域的应用。瑞士保罗谢勒研究所(PSI)的 E. A. Maugeri 课题组构造简单的喷墨打印系统^[33],在 0.635 μm 的 PE 高分子 膜上滴涂 Be(NO₃)₂ 溶液沉积 Be,用于⁷Be(n, a)⁴He 裂变截面的测量。该工作实现了在超薄底衬上制备核靶,使得该 靶件对能量为 8500 keV 的 α 粒子阻挡损失仅为 88 keV,远低于采用分子镀制备靶件的能量损失(814 keV)。德国 重离子研究所(GSI)^[34]利用喷墨打印进行 β 核素的点状阵列靶的研制。该团队组装了含压电传感的喷头,*x*,*y* 二 维电控样品台,以及控制软件的整套喷墨装置。利用该装置试验了³²P, ¹⁹⁸EAu 及³⁵S 的点状靶打印(墨水形态为核素 硝酸或盐酸体系水溶液),其中对于³⁵S,其打印空间分辨率为(72±25)μm,得到的阵列靶被用作成像板的空间分辨 率测量。同时,利用喷墨打印方法已成功制备出 10 nm 超薄 Th 靶^[53],用于基于异构状态²²⁹mTh 的核钟研究,以及含 重氢的点靶^[36],用以获得超精密测量的氘核和 HD⁺质量。上述工作揭示了喷墨打印在核靶制备方面的优势和潜 力,但以上的工作比较初步,墨水配制都为简单的硝酸(或盐酸)体系水溶液,制备得到的靶件均匀性关键质量指标偏离预期,报道为"不均匀的"。

上述两种方法仍在起步阶段,但已展现出制备复杂靶件领域的潜力。锕系材料墨水配制、镀层生长研究、程 序图案化打印方法、烧结过程控制等问题,是目前两种方法制备核靶领域需着重研究的方向。

2 核靶检测方法

在核数据测量实验中,精确了解锕系核靶关键质量参数如镀层同位素丰度、化学组成、均匀性、核子数(质量 厚度)、表面形貌(平整度、缺陷)及牢固性等,对于提高实验数据处理分析的准确性,降低核数据测量的不确定度 至关重要。其中最重要的两项为镀层均匀性和核子数。

2.1 核靶均匀性测量方法

核靶均匀性测量主要分为挡板法和成像板法。挡板法是利用半导体探测器测量核靶表面不同位置的发射率 来评价核靶均匀性,主要由探测器、挡板(准直器)、核靶和二维移动平台组成。探测器与核靶间平行放置一挡板, 挡板上设有小孔,挡板的厚度应足以吸收核靶发射的最大能量的粒子。核靶发射的带电粒子通过小孔进入探测器 灵敏区,其他区域的粒子则被挡板阻隔,通过二维移动平台移动核靶可以测量得到靶件不同区域的表面发射率分 布。这种方法的优点是不仅可以测量靶件均匀性,当设置探测器、核靶、挡板同轴时,可利用小立体角测量原理同 时得到镀层核子数;缺点是装置复杂,探测效率低,测量时间长(数天~数周),空间分辨率低(mm级),测量点之间 的边缘效应无法忽略。该方法是一种抽样方法,在源面上选取有限个点,难以做到活性区全覆盖,用有限个点的均 匀性评估整个活性区均匀性存在不可避免的偏差。

近年来,国内外多家研究机构如美国洛斯·阿拉莫斯国家实验室(LANL)^[57],JRC-Geel^[7],JGU^[38]、中国计量科学 研究院^[39],以及中国工程物理研究院等^[20]均发展了基于成像板法平面核靶均匀性表征技术。磷屏成像板是一种二 维的辐射图像记录材料,主要由荧光层、支持层、磁性层和保护层等部分组成。荧光层是成像板的信号记录层,其 主要成分是掺杂了微量 Eu²⁺的卤氟化钡晶体(BaFX:Eu²⁺, X=Cl, Br, I)和聚氨酯的混合物。将成像板与核靶紧密贴 合,核靶发射的射线在荧光层中沉积能量,使荧光晶体中部分 Eu²⁺电离成 Eu³⁺并释放电子。受激电子进入导带,被 Br⁻,F⁻或 Γ等离子的空穴俘获,形成亚稳态的"色彩中心"。辐照完成后,使用特定波长的激光对成像板进行扫描, 色彩中心俘获的电子受到激发,重新释放到导带,或被 Eu³⁺俘获,形成处于激发态的 Eu²⁺。处于激发态的 Eu²⁺退激 会发出波长为 390 nm 的光激发荧光光子。光电倍增管(PMT)捕获荧光光子并转换成电信号,经处理后生成数字 图像。通过建立成像板扫描生成的数字图像与辐射的响应关系,处理分析数字图像灰度分布计算得到核靶均匀性,如图 2 所示。该方法探测效率高、测量时间短(数 h)、空间分辨率高(μm 级)、可以实现源面全覆盖、测量结果直观,在核 靶均匀性测量上具有显著优势。





(b) image

2.2 核靶核子数测量方法

核靶镀层目标核素核子数的测量通常采用称重法和活度测量法。对于真空蒸镀、磁控溅射等方法制备得到 的锕系核靶,其镀层有确定的化学组成,可通过精密天平准确称取制备前后靶件的质量差,计算得到目标核素核子 数。对于采用分子镀或水溶液电镀的靶件,其镀层化学成分复杂且不均一,称重法无法精确得到目标核素质量,适 合采用活度法测量。立体角法是测量锕系核靶α粒子活度的一种绝对测量方法,其基本原理是假设核靶镀层发 射α粒子在4π方向上均匀且各向同性,此时探测器的探测效率G=Q/4π,仅与靶件活性区和探测器所张立体角 Q有关,因此在探测效率已知情况下可以不依赖于标准源实现对核靶活度的精确测量(图3)。立体角法适用范围 广,测量精度高,已在国内外得到广泛应用,中国计量科学研究院^[40]、欧洲标准物质研究中心^[41]及英国国家物理实 验室^[42]等国内外众多计量研究机构均搭建有立体角测量装置用于α放射源活度测量。

2.3 核靶其他化学性质测量方法

核靶的同位素丰度可通过质谱检测,核靶的表面形貌和化学成分组成可通过扫描电镜 SEM-EDS、X 射线光电子能谱分析 XPS, X 射线衍射 XRD 和飞行时间二次离子质谱 TOF-SIMS 等表征手段进行评估^[43-44],核靶的牢固性目前尚未有令人满意的测定方法,通常采用擦拭、振荡等定性方式评估。

3 国内外核靶研究机构及研究进展

核靶制备研究领域研究团队分布呈现集中化、合作化特 点, 欧盟及美国是目前核靶领域研究的主力团队(图4)。欧 盟成立了以 JRC-Geel 为主体, 联合 PSI, JGU, GSI, 波兰华沙 大学(HIL-UW)等机构整合制靶资源发展欧洲制靶平台, 全 面覆盖底衬制备、靶件制备、新方法研究、机理研究等领域^[1,45]。 该平台以 JRC-Geel 为主导, 该研究团队在 1960 年代就开展 了核靶制备方向的研究工作, 是真空蒸镀, 电喷雾, 电泳, 电 镀法等制备方法的开创者, 拥有雄厚的制备技术基础, 目前 主要负责 U, Pu 等常规锕系核靶的制备。其余研究团队也各 有侧重点, GSI 主要负责新技术研发(物理气相沉积、喷墨打 印)和超薄靶等前沿方向的研究^[46], JGU 聚焦于分子镀技术 及其中的关键科学问题^[44], PSI 负责 Tm, Pm, Be, B 等其他靶 件的制备^[47-48]。

美国核靶制备机构主要由 LANL, LBNL, 俄亥俄州立大学(OSU)等^[37]构成。在 20 世纪 90 年代美国就已掌握了分子镀技术(Ti 底衬上电镀²²⁹Th 及²⁵⁴Es)^[49], 现阶段分子镀主要在 LANL 开展, 同时 OSU 在 Actinide Research Facility (ARF)





TA-48 建立了制靶实验室^[48,50]。在 2008 年之前,美国已进行多次的核参数测量并制备相应的核靶,包含²³²⁻²³⁸U, ²³⁹⁻²⁴⁴Pu, ²⁴¹⁻²⁴³Am, ²³⁷⁻²³⁸Np, ²⁴²⁻²⁴⁸Cm, ²²⁹⁻²³²Th, ⁴⁸Ca, ⁵⁶Fe, ¹H, ⁷Li, ¹⁰B 等^[10,51-52]。为进一步提高裂变截面的测量精度,美国 LANL 于 2005 年开始大力发展 TPC 裂变时间投影室测量反应截面^[53-54],因此核靶的研究重心转移至 TPC 用多元素 靶及超薄靶的研究。W. Loveland 课题组发展了 TPC 超薄靶及多元素靶的制备,使用真空蒸镀法制备得到超薄碳 膜的 U, Th 多元素靶, ²³⁵U, ²³⁸U 多元素靶, ²³⁹Pu, ²³⁵U, ²³⁸U 的扇形多元素靶^[55]。



 Fig. 4
 Distribution of nuclear target research institutions

 图 4
 国内外核靶研究机构分布图

我国核靶制备主要有中国科学院、中国原子能科学研究院和中国工程物理研究院等单位。中国科学院上海 原子核研究所,报道了以AI箔,C膜及VYNS膜为底衬,利用真空蒸镀法制备的铀薄靶^[50]。中国科学院近代物理 研究所,报道了采用分子镀方法制备质量厚度较高的Am靶^[57]以及制备薄铝箔上U靶及一系列镧系靶件^[58]。中国 原子能科学研究院,完成分子镀²³⁷Np靶的制备^[59]及²³²Th靶、小面积Pu靶的制备^[60-61]等。中国工程物理研究院核 物理与化学研究所(图 5),拥有水溶液电镀及分子镀制备技术、磁控溅射制靶技术,完成了平面靶(主要包含核素 为²³⁸U, ²³⁵U, ²³²Th, ²⁴¹Am, ²³⁹Pu等)的制备^[20,62-63],并拥有超薄底衬分区靶、微区域靶、圆筒靶等复杂靶件的制备能力^[64],



Fig. 5 Typical nuclear target products of China Academy of Engineering Physics 图 5 中国工程物理研究院代表性核靶产品

制备的靶件已应用于微观核参数测量,裂变电离室探测器,堆芯探测器等多个项目,相关物理测量数据已发表在多个具有影响力的期刊上^[65-66]。

4 展 望

目前全球核数据研究与测量方向受到了持续关注^[45,67]。随着核数据研究与测量技术的不断发展,新的测试方 法不断涌现。对于核靶领域来说,要不断适配新型探测器的测量要求。因此复杂靶件的制备成为核靶领域未来需 要重点突破的方向,如时间投影室(TPC)测量高精度裂变截面,因其4π测量的要求需匹配超薄底衬分区靶。第四 代 MPFD 堆芯探测器需要陶瓷底衬的微区域靶^[68]。而目前采用传统核靶制备手段研制这些靶件时,遇到了步骤复 杂、靶件成功率低等瓶颈问题^[69],需要核靶研究团队加快研发具有更广普适性的核靶制备新方法。同时,目前核 靶制备的关键参数需要进一步提升,需围绕着分子镀的工艺研究为重心,同时加强核靶制备的理论研究和标准化。

随着国际对我国核行业技术封锁的不断升级,我国核技术发展的"卡脖子"问题日益严重,目前亟需打破国外 在核参数测量、中子测量等关键技术上的技术壁垒。我国核靶制备领域发展较为缓慢,核靶领域研究团队较少且 较为分散,目前我国仅有少数单位掌握分子镀、真空蒸镀等传统核靶制备方法,且多为2000年前后的工作,已停 滞多年。因此为满足我们核数据测量与研究方向对靶件的总体需求,当务之急为重启先前工作,在原有基础上优 化研发分子镀、真空蒸镀与磁控溅射锕系靶件制备方法,协调各个研究团队的优势,构建我国的核靶制备与评价 平台。与此同时,当前国际靶件制备领域科研发展缓慢也给了我们缩小差距甚至赶超的时机,新方法的建立与机 理研究目前已经启动,我国已有原创性的工作发表^[20]。综上所述,受到我国核数据测量与研究自主化发展大潮的 牵引,我国核靶领域的发展将迎来新的机遇与挑战。

参考文献:

- Schumann D, Sibbens G, Stolarz A, et al. ANITA (Advanced Network for Isotope and TArget laboratories) The urgent need for a European target preparation network [J]. AIP Conference Proceedings, 2018, 1962: 020001.
- [2] Eberhardt K, Düllmann C E, Haas R, et al. Actinide targets for fundamental research in nuclear physics [J]. AIP Conference Proceedings, 2018, 1962: 030009.
- [3] Chadwick M B, Capote R, Trkov A, et al. CIELO collaboration summary results: international evaluations of neutron reactions on uranium, plutonium, iron, oxygen and hydrogen[J]. Nuclear Data Sheets, 2018, 148: 189-213.
- [4] Roberto J B, Alexander C W, Boll R A, et al. Actinide targets for the synthesis of super-heavy elements [J]. Nuclear Physics A, 2015, 944: 99-116.
- [5] Letourneau A, Bringer O, Chabod S P, et al. Recent developments on micrometric fission chambers dedicated for high neutron fluxes[J]. IEEE Transactions on Nuclear Science, 2011, 58(4): 1913-1920.
- [6] 周小红, 徐瑚珊. 合成和发现超铀化学元素、探索超重核稳定岛[J]. 物理, 2019, 48(10): 640-648. (Zhou Xiaohong, Xu Hushan. Search for and synthesis of transuranium elements, and exploration of the stability island of superheavy nuclides[J]. Physics, 2019, 48(10): 640-648)
- [7] Stolarz A, Eykens R, Moens A, et al. Actinide target preparation at IRMM—then and now[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, 613(3): 351-356.
- [8] Verdingh V. The preparation of layers by electrospraying and electrophoresis [J]. Nuclear Instruments and Methods, 1972, 102(3): 497-500.
- [9] Pauwels J, Tjoonk J. Spraypainting of deposits for nuclear measurements [J]. Nuclear Instruments and Methods, 1979, 167(1): 77-79.
- [10] Baker J D, McGrath C A, Hill T S, et al. Actinide targets for neutron cross section measurements [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2008,

276(2): 555-560.

- [11] Oh J S, Warwick P E, Croudace I W, et al. Evaluation of three electrodeposition procedures for uranium, plutonium and americium[J]. Applied Radiation and Isotopes. 2014. 87: 233-237.
- [12] Crespo M T. A review of electrodeposition methods for the preparation of alpha-radiation sources [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2012, 70(1): 210-215.
- [13] Sibbens G, Moens A, Eykens R, et al. Preparation of ²⁴⁰Pu and ²⁴²Pu targets to improve cross-section measurements for advanced reactors and fuel cycles[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, 299(2): 1093-1098.
- [14] Bond E M, Moody W A, Bredeweg T A. Production of double-sided targets by electrodeposition: initial evaluation and optimization of performance [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2013, 296(2): 847-851.
- [15] Sibbens G, Ernstberger M, Gouder T, et al. Morphological and compositional study of ²³⁸U thin film targets for nuclear experiments[J]. AIP Conference Proceedings, 2018, 1962: 030007.
- [16] Vascon A, Santi S, Isse A A, et al. Smooth crack-free targets for nuclear applications produced by molecular plating[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2013, 714: 163-175.
- [17] Vascon A, Santi S, Isse A A, et al. Elucidation of constant current density molecular plating [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2012, 696: 180-191.
- [18] Vascon A, Wiehl N, Runke J, et al. Improving material properties and performance of nuclear targets for transmutation-relevant experiments[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2015, 305(3): 913-919.
- [19] Vascon A, Runke J, Trautmann N, et al. Quantitative molecular plating of large-area ²⁴²Pu targets with improved layer properties [J]. Applied Radiation and Isotopes, 2015, 95: 36-43.
- [20] He Yao, Han Lianhuan, Wang Chao, et al. Molecular plating of actinide compounds on wafer-scale aluminum substrate [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2021, 878: 160393.
- [21] Sibbens G, Moens A, Vanleeuw D, et al. Multi-layer ²³⁵UF₄-⁶LiF–Au targets for high-resolution fission fragment measurements[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2014, 87: 229-232.
- [22] Vanleeuw D, Sibbens G, Plompen A. Determination of the hydrogen content of thick tristearin layers prepared by physical vapour deposition[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2015, 305(3): 957-962.
- [23] Gursky J C, Povelites J G. Fifth annual conference of the International Nuclear Target Development Society[R]. Los Alamos Scientific Lab N Mex (USA), 1977.
- [24] Stolarz A. Target preparation for research with charged projectiles [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2014, 299(2): 913-931.
- [25] Vanleeuw D, Lewis D, Moens A, et al. Implementation of new integrated evaporation equipment for the preparation of ²³⁸U targets and improvement of the deposition process[J]. AIP Conference Proceedings, 2018, 1962: 030008.
- [26] 易泰民, 邢丕峰, 李朝阳, 等. 金属铀膜的制备及应用现状[J]. 核技术, 2009, 32(12): 905-910. (Yi Taimin, Xing Pifeng, Li Chaoyang, et al. Progresses in uranium film fabrication and application[J]. Nuclear Techniques, 2009, 32(12): 905-910)
- [27] 易泰民, 邢丕峰, 唐永建, 等. 磁控溅射制备金属铀膜[J]. 原子能科学技术, 2010, 44(7): 869-872. (Yi Taimin, Xing Pifeng, Tang Yongjian, et al. Preparation of metal uranium films by magnetron sputtering[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2010, 44(7): 869-872.)
- [28] Drapchinsky L V, Shpakov V I. Preparation of actinide targets by radio-frequency sputtering[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1995, 362(1): 100-103.
- [29] Jia Q, McCleskey T M, Burrell A K, et al. Polymer-assisted deposition of metal-oxide films [J]. Nature Materials, 2004, 3(8): 529-532.
- [30] Scott B L, Joyce J J, Durakiewicz T D, et al. High quality epitaxial thin films of actinide oxides, carbides, and nitrides: advancing understanding of electronic structure of f-element materials[J]. Coordination Chemistry Reviews, 2014, 266/267: 137-154.
- [31] Ali M N, Garcia M A, Parsons-Moss T, et al. Polymer-assisted deposition of homogeneous metal oxide films to produce nuclear targets [J]. Nature Protocols, 2010, 5(8): 1440-1446.
- [32] Oganessian Y. Heaviest nuclei from ⁴⁸Ca-induced reactions [J]. Journal of Physics G:Nuclear and Particle Physics, 2007, 34(4): R165-R242.
- [33] Maugeri E A, Heinitz S, Dressler R, et al. Preparation of ⁷Be targets for nuclear astrophysics research [J]. Journal of Instrumentation, 2017, 12: P02016.
- [34] Haas R, Lohse S, Düllmann C E, et al. Development and characterization of a Drop-on-Demand inkjet printing system for nuclear target fabrication [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, 874: 43-49.
- [35] von der Wense L C, Seiferle B, Schneider C, et al. The concept of laser-based conversion electron Mössbauer spectroscopy for a precise energy determination of ^{229m}Th[J]. Hyperfine Interactions, 2019, 240: 23.
- [36] Rau S, Heiße F, Köhler-Langes F, et al. Penning trap mass measurements of the deuteron and the HD⁺ molecular ion [J]. Nature, 2020, 585(7823): 43-47.
- [37] Bredeweg T A. Nuclear science at LANL: facilities and capabilities [C]//Proceedings of the 9th Tri-lab Nuclear Data Workshop. Los Alamos: Los Alamos National Lab. (LANL), 2018.
- [38] Liebe D, Eberhardt K, Hartmann W, et al. The application of neutron activation analysis, scanning electron microscope, and radiographic imaging for the characterization of electrochemically deposited layers of lanthanide and actinide elements [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 590(1/3): 145-150.
- [39] 符燕,梁珺成,邹宇,等.磷屏成像的计量性能测试及其在大面积平面源均匀性评价中的应用[J].核化学与放射化学,2017,39(1):83-89. (Fu Yan, Liang

Juncheng, Zou Yu, et al. Metrology performance test of phosphor screen imaging and its application on uniformity evaluating of large-area sources [J]. Journal of Nuclear and Radiochemistry, 2017, 39(1): 83-89)

- [40] 王沥苑. 基于小立体角方法的冷凝Rn-222源绝对测量[D]. 南昌: 东华理工大学, 2018. (Wang Liyuan. Condensation Rn-222 source absolute measurement based on the small solid angle method[D]. Nanchang: East China University of Technology, 2018)
- [41] Denecke B, Eykens R, Pauwels J, et al. Characterization of actinide targets by low solid-angle alpha particle counting [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1999, 438(1): 124-130.
- [42] Arinc A, Parfitt M J, Keightley J D, et al. Defined solid angle alpha counting at NPL[J]. Applied Radiation and Isotopes, 2016, 109: 198-204.
- [43] Ko Y G, Lim J M, Choi G S, et al. Characterizations of electrodeposited uranium layer on stainless steel disc[J]. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, 2015, 487: 121-130.
- [44] Sadi S, Paulenova A, Watson P R, et al. Growth and surface morphology of uranium films during molecular plating[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2011, 655(1): 80-84.
- [45] Sibbens G, Moens A, Vanleeuw D, et al. Nuclear targets within the project of solving CHAllenges in Nuclear DAta[J]. EPJ Web of Conferences, 2017, 146: 03022.
- [46] Henderson R A, Gostic J M, BurkeJ T, et al. Electrodeposition of uranium and plutonium on thin carbon and titanium substrates[R]. LLNL-PROC-471497, 2011.
- [47] Ayranov M, Schumann D. Preparation of ²⁶Al, ⁵⁹Ni, ⁴⁴Ti, ⁵³Mn and ⁶⁰Fe from a proton irradiated copper beam dump[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2010, 286(3): 649-654.
- [48] Schumann D, Neuhausen J, Dillmann I, et al. Preparation of a ⁶⁰Fe target for nuclear astrophysics experiments [J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2010, 613(3): 347-350.
- [49] Fowler M M, Gursky J C, Wilhelmy J B. Preparation of actinide targets and sources using nonaqueous electrodeposition[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 1991, 303(1): 99-101.
- [50] Roman A R, Zhao X, Bond E M, et al. 2017 report for new LANL physical vapor deposition capability [R]. Los Alamos: Los Alamos National Lab, 2017.
- [51] Greene J P, Ahmad I. Molecular plating of actinides on thin backings[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2008, 590(1/3): 131-133.
- [52] FitzPatrick J R, Bond E, Slemmons A, et al. Preparation of americium targets for nuclear chemistry experiments at DANCE[J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2008, 276(2): 561-566.
- [53] Heffner M, Asner D M, Baker R G, et al. A time projection chamber for high accuracy and precision fission cross-section measurements[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2014, 759: 50-64.
- [54] Geppert-Kleinrath V, Tovesson F, Barrett J S, et al. Fission fragment angular anisotropy in neutron-induced fission of ²³⁵U measured with a time projection chamber [J]. Physical Review C, 2019, 99: 064619.
- [55] Loveland W. High quality actinide targets [J]. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2016, 307(3): 1591-1594.
- [56] 魏永钦, 曹德林, 王秋玉. ²³⁵U, ²³⁸U薄靶的制备[J]. 核技术, 1983(3): 56. (Wei Yongqin, Cao Delin, Wang Qiuyu. The preparation of ²³⁵U and ²³⁸U thin film targets[J]. Nuclear Techniques, 1983(3): 56)
- [57] 秦芝, 郭俊盛, 甘再国. 分子镀法制备厚镅(^{241, 243}Am) 靶[J]. 同位素, 2000, 13(4): 209-214. (Qin Zhi, Guo Junsheng, Gan Zaiguo. Preparation of the thicker ^{241, 243}Am targets by molecular plating method[J]. Journal of Isotopes, 2000, 13(4): 209-214)
- [58] 白静,吴晓蕾,林茂盛,等.单次分子镀法制备部分La系及²³⁸U靶的实验研究[J]. 原子核物理评论, 2010, 27(2):187-191. (Bai Jing, Wu Xiaolei, Lin Maosheng, et al. Experimental study on preparation of some lanthanide and ²³⁸U targets by using single-cycle molecular plating method[J]. Nuclear Physics Review, 2010, 27(2):187-191)
- [59] 罗旭. 分子电镀法制备²³⁷Np核靶[J]. 原子能科学技术, 2002, 36(4/5): 409-412. (Luo Xu. Preparation of ²³⁷Np targets by molecular plating[J]. Atomic Energy Science and Technology, 2002, 36(4/5): 409-412)
- [60] 杨春莉, 吴俊德, 苏树新, 等. 分子镀法制备Th-232靶[C]//中国核科学技术进展报告——中国核学会2009年学术年会论文集 (第一卷·第 4 册). 北京: 中国 核学会, 2009. (Yang Chunli, Wu Junde, Su Shuxin, et al. The preparation of Th-232 target by molecular plating method[C]//Progress Report on Nuclear Science and Technology in China (Vol. 1). Proceedings of Academic Annual Meeting of China Nuclear Society in 2009, No. 6--Radiochemical. Beijing: Chinese Nuclear Society, 2009)
- [61] 孙晓祎,毛国淑,黄昆,等.小面积Pu靶的制备[C]//第三届全国核化学与放射化学青年学术研讨会论文摘要集.南宁:中国化学会, 2015. (Sun Xiaoyi, Mao Guoshu, Huang Kun, et al. The preparation of small-area Pu targets[C]//Abstracts of the 3rd National Youth Symposium on Nuclear Chemistry and Radiochemistry. Nanning: Chinese Chemical Society, 2015)
- [62] 陈琪萍, 钟文彬, 李有根. 电沉积法制备²³⁵U靶[J]. 中国核科技报告, 2004(2): 53-61. (Chen Qiping, Zhong Wenbin, Li Yougen. Preparation of ²³⁵U target by electrodeposition[J]. China Nuclear Information Centre, 2004(2): 53-61)
- [63] 何佳恒, 陈琪萍, 党宇峰, 等. 电沉积法制备²³⁸U靶件的研究[J]. 表面技术, 2010, 39(6): 80-83. (He Jiaheng, Chen Qiping, Dang Yufeng, et al. Preparation of ²³⁸U targets by electro-deposition method[J]. Surface Technology, 2010, 39(6): 80-83)
- [64] 何佳恒,陈琪萍,党宇峰,等. 管状电沉积铀靶的制备和检测[J]. 化学研究与应用, 2010, 22(2): 248-252. (He Jiaheng, Chen Qiping, Dang Yufeng, et al. Preparation and testing techniques for Uranium target prepared by electro-deposition[J]. Chemical Research and Application, 2010, 22(2): 248-252.)

- [65] Wen Jie, Yang Yiwei, Wen Zhongwei, et al. Measurement of the U-238/U-235 fission cross section ratio at CSNS Back-n WNS[J]. Annals of Nuclear Energy, 2020, 140: 107301.
- [66] Ren Zhizhou, Yang Yiwei, Wen Jie, et al. Measurement of the ²³⁶U(*n*, *f*) cross section for neutron energies from 0.4 MeV to 40 MeV from the back-streaming white neutron beam at the China Spallation Neutron Source [J]. Physical Review C, 2020, 102: 034604.
- [67] Bernstein L A, Brown D A, Koning A J, et al. Our future nuclear data needs [J]. Annual Review of Nuclear and Particle Science, 2019, 69: 109-136.
- [68] Reichenberger M A, Nichols D M, Stevenson S R, et al. Fabrication and testing of a 4-node micro-pocket fission detector array for the Kansas State University TRIGA Mk. II research nuclear reactor[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2017, 862: 8-17.
- [69] Reichenberger M A, Ito T, Ugorowski P B, et al. Electrodeposition of uranium and thorium onto small platinum electrodes[J]. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, 2016, 812: 12-16.