

回流离子来源及特征分析^{*}

龙继东^{2;1)} 石金水² 禹海军² 林郁正¹

1 (清华大学工程物理系 北京 100084)

2 (中国工程物理研究院 绵阳 621900)

摘要 强流电子束轰击在辐射转换靶上可产生正离子. 这些离子在电子束空间电荷场作用下回流, 对电子束聚焦会有影响, 从而可能改变焦斑大小, 影响 X 光机的照相分辨率. 离子种类、离子流的大小是很关注的参量. 本文分析了回流离子来源及其特征, 认为回流离子以靶表面杂质热释放后被电子束直接电离生成的离子为主, 离子发射受空间电荷限制而非受源限制.

关键词 束靶相互作用 电子束斑 回流离子 电离截面 热释放

1 引言

在辐射成像技术中, 光源性质对成像质量有着直接影响. 利用聚焦电子束, 轰击韧致辐射转换靶获得点光源是目前大型 X 光机中所采用的技术. 小而稳定的焦斑是研究的目标之一. 美国学者 D. Welch 提出了一个可能导致焦斑崩溃的机制^[1]. 强流电子束轰击靶, 会导致靶表面杂质热释放, 生成等离子体, 同时束流电荷在靶表面形成的数百个 MV/m 的强轴向电场. 这个轴向电场将从等离子体中拉出正离子, 使其回流形成离子柱, 对束流提供时变的聚焦力, 使得电子束在靶上的焦斑先箍缩然后迅速散开, 从而破坏了点光源的性质. 因此, 回流离子理论一经提出, 立刻引起从事 X 光机研究的学者们的兴趣. LANL(洛斯·阿拉莫斯实验室)以 J. T. Kwan 为主的学者通过 PIC 数值模拟验证了先箍缩, 后散焦的回流离子效应, 并指出模拟结果和其实验结果一致^[2-4], 但判定离子种类不是杂质的轻离子, 而是靶材重离子; LLNL(利弗莫尔实验室)的理论工作认可 D. Welch 的观点^[5,6], 只是具体计算模型有所差异, 但实验结果没能观察到回流离子过聚焦现象, 也没能直接捕捉到离子信号^[7-9]; 法国学者 C. Vermare,

J. Labrouche, D. Villate 等通过理论、数值模拟和实验研究肯定了 D. Welch 的理论预测^[10,11], 但其实验手段属于间接证明的形式, 且实验参数和实验结果间的因果关系也有待商榷. 国内也进行了和法国学者类似的条件下的同类实验, 但没能观察到焦斑先箍缩, 后散开的现象^[12]; 同时用法拉第杯和 CR-39 固体径迹探测器直接捕捉回流离子信号, 均未能获得理论预测的信号.

如果回流离子是靶材重离子, 那么离子蒸发和回流形成一定长度的离子柱需要的时间都长于杂质轻离子. 因此, Kwan 认为 LLNL 观察不到回流离子效应是因为电子束脉冲太短, 重离子的影响来不及体现. 但粉末冶金法制成的高熔点重金属(通常为钽、钨)的高含杂性, 再结合法国学者的结果以及下面将提到的强流二极管阳极离子特性, 这 3 种因素使得重离子之说可能不具有普遍性. D. Welch 则提出了离子流发射不满足空间电荷限制流发射, 而是受源限制发射的观点, 认为回流离子效应不显著是由于产生的杂质离子量太少造成的^[13]. 于是, 离子来源及特征变得重要起来. 而过去对整个问题的研究重点放在其危害和防范上, 对离子来源及特征并没专门研究. 实际上, 离子来源可能是靶表面杂质, 也可

2004-07-19 收稿

* 国防科技基础研究项目资助

1) E-mail: longjidong@tsinghua.org.cn

能是靶金属蒸汽(因高真空,加速腔内残余气体可忽略);另一方面,从气体电离的机制来说,还存在电子束直接电离和雪崩式电离以及二次电子,离子电离等多种机制.因此,有必要对离子来源及特征进行仔细分析.

2 靶面杂质和靶金属蒸汽释放特征

2.1 吸附杂质的释放

靶材释放杂质气体的方式有两种,一种是热释放,一种是受激释放.对于 MeV 以上高能电子,其受激释放截面很小^[14],所以这里只考虑热释放.表面吸附杂质分子通过热运动逐渐脱离表面,就产生热释放.热释放率和平均吸附时间、温度和束缚能等密切相关.可以通过热释放公式来描述.

$$\frac{dn}{dt} = -\nu_x n^x(t) \exp\left[-\frac{Q}{RT(t)}\right], \quad (1)$$

这里 dn/dt , 单位 $[\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}]$ 是单位时间,单位面积释放原子数, $n(t)$ $[\text{atomos} \cdot \text{cm}^{-2}]$ 是表面含杂质, Q $[\text{kJ} \cdot \text{mol}^{-1}]$ 是释放杂质的束缚能, $R = 8.3126 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, T $[\text{K}]$ 是气体和电极温度. ν_x 是释放率常数,其脚标 x 代表释放反应的阶次,分为一阶或二阶:一阶情况下假定了被吸附分子间无相互作用,适合物理吸附和非离解的化学吸附情况,通常 $\nu_1 \approx 10^{13 \pm 1} \text{ s}^{-1}$, 代表原子的振荡频率;二阶情况针对吸附气体在材料表面离解.大多数双原子分子气体,如 H_2 , O_2 , N_2 等吸附在金属表面发生离解,需要用二阶方程描述, ν_2 通常在 $10^{-4} \sim 10^{-1} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 范围.

杂质的释放过程和杂质的种类、吸附状态、材料种类及表面性质密切相关.20 世纪 60—80 年代,在强流相对论二极管领域开展了大量电极等离子体的研究,基本肯定阴阳电极面的等离子体以杂质元素为主构成^[15—17]. T. W. L. Sanford^[15] 等人在 HELIA 装置(3.2MeV, 150kA, 脉宽约 60ns)上详细测量了电子束轰击 Ta 靶产生的离子信号.其实验环境和回流离子的产生环境类似,所以认为其结果是可信的.该文献中的结论是钽靶情况下,杂质基本由水蒸气或是油分子等碳氢化合物构成,结论和文献^[14]一致.这里简化,认为杂质就是水蒸气.接下来计算水蒸气的产生率.

水蒸气在材料中的束缚能和材料种类及表面性质等关系很大,没有确定的数值.从文献^[14, 15]中可以得到束缚能在 $84 \sim 126 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ 范围.下限情况

下水蒸气产率最大,所以取 $Q = 84 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$;同时认为靶表面杂质近似均匀分布,设共有 N_{ml} 层水分子覆盖在靶表面,每层水分子密度 $n_0 = 10^{15} \text{ cm}^{-2}$.

此热释放反应是一阶反应,准确的释放率常数可以通过计算固体原子振荡周期的 Lindermann 公式求得

$$\frac{1}{\nu_1} = 4.75 \times 10^{-13} \sqrt{\frac{\mu V^{2/3}}{T_s}}, \quad (2)$$

这里 μ 代表分子量, V 代表摩尔体积 $[\text{cm}^3]$, T_s 为熔点 $[\text{K}]$.杂质被吸附在金属基底表面,可近似认为和金属原子同频振荡,因此采用基底元素参数进行计算.

在公式(1)基础上积分,可以得到水蒸气释放份额 F 和靶加热时间的关系.

$$F = 1 - \exp\left[-\nu \int \exp\left[-\frac{Q}{RT(t)}\right] dt\right]. \quad (3)$$

求释放水蒸气份额随时间的变化,还需要知道靶表面的温度变化情况.采用蒙特卡罗数值模拟的方法得到 12MeV 电子束在钽靶表面的能量沉积功率^[18],再计算得到钽靶的温度变化规律近似满足下面公式(瞬态过程完全可忽略掉热传导和热辐射的损失):

$$T(t) \approx T_0 + 320 \frac{I_b}{r_b^2} t, \quad (4)$$

式中 t 表示时间 $[\text{ns}]$, I_b 代表电子束流强 $[\text{kA}]$, r_b 代表打靶束斑半径 $[\text{mm}]$, T_0 代表靶初始温度 $[\text{K}]$.实际上,入射电子在材料表面的能量沉积基本由其在表面的碰撞能量损失率来决定,而可以忽略辐射能量损失等影响.对于 1—20MeV 的入射电子,其在材料中的碰撞能量损失率变化不大,在钽中约 $1.2 \text{ MeV} \cdot \text{cm}^2/\text{g}$.因此(4)式适合入射电子能量范围在 1—20MeV,且垂直于靶表面入射的情况.在忽略次级粒子对靶表面加热的条件下,只考虑初始电子碰撞能量损失率的变化,电子能量差异带来的不确定度小于 25%.

以 12MeV、束脉宽 60ns、流强 2.2kA、焦斑半径 3mm 的电子束入射钽靶为例,根据(4)式和(3)式可以得到靶表面温度和水蒸气热释放份额曲线,见图 1.这里忽略了钽的熔化热.需说明钽的汽化热很大,一般是不能忽略的.杂质束缚能分别取 $84 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ 和 $126 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$, $T_0 = 300 \text{ K}$.图 1 中两条曲线所围灰色区域就代表上述两束缚能之间的其他束缚能对应的情况.图中的直线表示靶表面温度的变化.

从图 1 可以看出绝大部分水蒸气会在束脉冲前 25ns 里被释放.实际上,靶上水蒸气消失的时间应

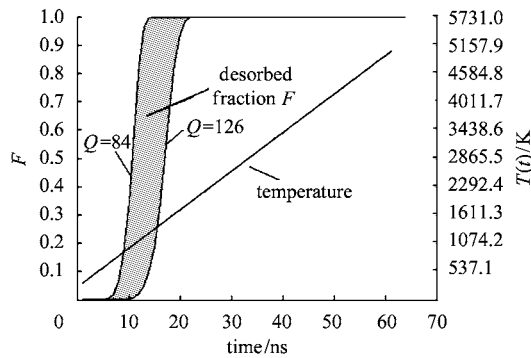


图 1 水蒸气释放份额和靶表面温度随脉冲时间的变化

该比 25ns 更短,因为当钽的温度高于 1000 多度时会造成大量水分子直接离解,而这里简化,认为水蒸气在 25ns 前里完全释放.

2.2 靶金属蒸汽的释放

常温下,金属表面蒸汽压非常小,但随着金属温度升高,其蒸汽压迅速增大,因此,金属蒸汽也完全可能成为离子来源.

金属蒸发率可以表示成温度的函数,如下:

$$\frac{dN}{dt} = P_v (2\pi MkT)^{-1/2}, \quad (5)$$

这里 P_v 是饱和蒸汽压, M 是金属原子量, k 是 Boltzmann 常数, T 是温度.

根据方程(1)和(5)绘出了几种常见靶材金属的蒸汽释放率和束流能在 84—126kJ·mol⁻¹范围的杂质释放率对比曲线,见图 2.可以看出杂质释放率高出金属蒸汽释放率数个量级.显然,只要杂质含量足够多,满足回流离子的空间电荷限制流发射,就可以

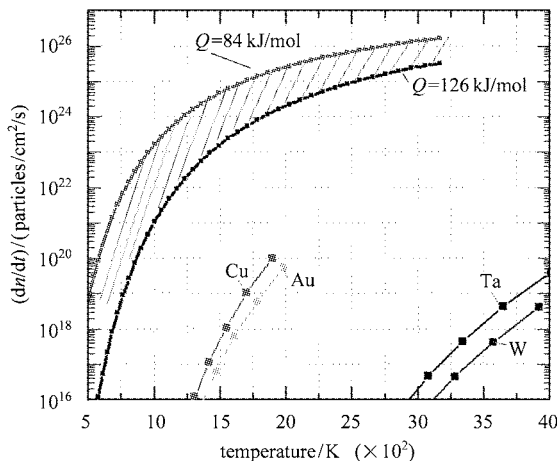


图 2 单原子层杂质释放率和靶材金属释放率随温度的变化曲线

忽略靶材直接气化对回流离子的贡献.

本节所用公式或推导公式的由来以及图 2 中所用材料的蒸发率数据可参考文献[19,20].

3 回流离子的生成

3.1 电离截面的计算

计算离子的产量需要知道相关电离截面.遗憾的是大量公开的实验数据都是针对几十 eV ~ keV 低能段的电子电离截面,没能获得 10MeV 量级的电子的实验数据.一般认为电离模型对于高能电子来说足够精确.应用修正的 RBEB (Relativistic-Binary-Encounter-Bethe)模型^[21,22],计算得到如图 3 所示的电离截面曲线.生成的离子为 H₂O⁺ H₂O 生成分子态离子的电离截面要远大于生成单原子离子的电离截面.

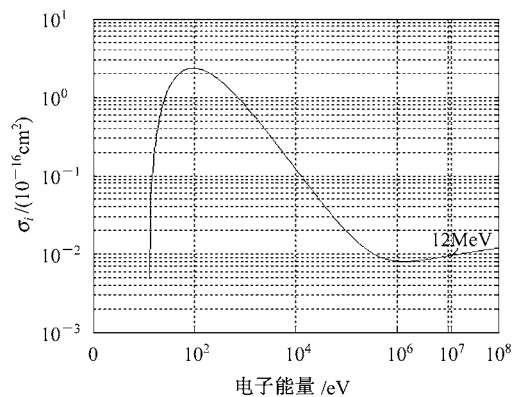


图 3 H₂O 的电离截面曲线

取电子能量为 12MeV,其轰击 H₂O 的电离截面是: $\sigma = 9.6 \times 10^{-19} \text{cm}^2$.

3.2 释放水蒸气的直接电离

设束流对靶加热到 t 时刻后,靶表面的 N_{ml} 层的水分子覆盖层被完全释放,并在靶表面形成厚度为 ΔL 的蒸汽层.在该蒸汽层中入射电子的自由程为

$$\lambda_d = \left(\frac{N_{ml} \cdot n_0}{\Delta L} \sigma \right)^{-1}. \quad (6)$$

释放水蒸气被束流电子直接电离生成的离子密度:

$$N_{ion}|_d = \frac{I_b \cdot \Delta t}{\pi r_b^2 e} \cdot N_{ml} \cdot n_0 \cdot \sigma \cdot \frac{1}{\Delta L}, \quad (7)$$

这里 Δt 代表束流脉宽, e 代表单个电子电荷量.该离子密度和产生蒸汽的扩散速度有关,而准确的获

得 ΔL 的值几乎不可能,另一方面,我们更关心离子发射究竟是满足源限制还是空间电荷限制.所以让 ΔL 待定,用其求剩余的参数.

首先看其空间电荷中和能力,电荷中和系数满足(8)式:

$$\eta|_d = \frac{N_{\text{ion}}|_d}{N_e} = c \cdot \Delta t \cdot N_{\text{ml}} \cdot n_0 \cdot \sigma \cdot \frac{1}{\Delta L} \quad (8)$$

N_e 代表入射束电子密度.代入各已知的参数值到(8)式,可得到:

$$\eta|_d = 1.7 \cdot \frac{N_{\text{ml}}}{\Delta L}.$$

这里 ΔL 的单位为 cm.因为杂质分子热运动速度是 $\text{cm}/\mu\text{s}$ 的量级,而束脉冲持续时间仅 60ns,所以这里 ΔL 的值小于 1.只要杂质层数 N_{ml} 大于 1,靶前的等离子体密度完全可高于束流电荷密度.

接着分析如果离子流遵循空间电荷限制发射,其能够持续的时间.按照离子发射的近似势模型^[1,10],电势大小为无限长束流中心电势,等效二极管发射间距为束半径,发射面积等于束斑大小,可得空间电荷限制下的离子流公式:

$$I_{\text{ion}} = \frac{4\pi\epsilon_0}{9} \left[\frac{2Ze}{m_{\text{ion}}} \right]^{1/2} \left[\frac{I_b}{4\pi\beta c \epsilon_0} \right]^{3/2}, \quad (9)$$

式中 ϵ_0 是真空介电常数, m_{ion} 为离子质量, β 是束流电子相对论速度, c 是光在真空中的传播速度, Z 代表离子的价态.

设 t_{ion} 是离子流持续时间,则其满足:

$$t_{\text{ion}} = \frac{N_{\text{ion}}|_d \cdot \pi r_b^2 \cdot \Delta L \cdot e}{I_{\text{ion}}}. \quad (10)$$

代入前面的 12MeV 束流的相应参数以及离子参数,最终可得

$$\frac{t_{\text{ion}}}{\Delta t} \approx 3N_{\text{ml}}. \quad (11)$$

前面已经提到过 Ta 金属具有成分的高含杂质性以及多孔性质.不仅如此, Ta 还是优良的氢气吸附体以及富含表面氧化物和氮化物^[23].因此,认为杂质 N_{ml} 可达数层是合理的.根据式(8)和(11),有理由相信回流离子以杂质离子为主,满足空间电荷限制流条件.

3.3 其他电离模式

3.3.1 雪崩式电离

雪崩式电离能产生充分电离的等离子体,提供足够的离子,因此最初的回流离子模型都默认了雪崩式电离的存在.为验证这一隐含条件的合理性,做

如下估算:

设引发雪崩过程的二次电子两次电离碰撞间的自由程为 λ ,靶表面的 N_{ml} 层的水分子覆盖层被完全释放,并在靶表面形成 ΔL 的蒸汽层,二次电子能量对应的电离截面保守的取最大值 $\sigma_{\text{max}} \approx 3.0 \times 10^{-16} \text{cm}^2$ (对应 100eV 左右低能电子),可推导得到这些物理量满足下面关系式

$$\frac{\lambda}{\Delta L} \approx \frac{3.3}{N_{\text{ml}}}. \quad (12)$$

显然,该自由程和杂质厚度可比拟,且又是最保守的结果.因此,必然是大量次级电子来不及获得足够能量就回到靶上,雪崩效应难以持续.

3.3.2 正离子对电离的贡献

认为正离子对电离贡献可忽略,给出定性的证明:1) 按照电击穿的理论,正离子对电离的贡献小于电离电子对电离的贡献^[24],既然这里后者对电离贡献小,有理由认为前者同样对电离贡献小;2) 如果大量离子参与电离,则离子的能量不断通过电离碰撞损失,能量无法累积增加,也就无法快速回流,造成回流离子过聚焦效应.

3.3.3 其他粒子对电离的贡献

束靶作用时整个靶室空间充满各种射线,反射电子、光子等都会引起中性气体电离.尤其是束流能量密度高的情况下,还可能存在类似激光烧蚀产生等离子体的机制:中性气体吸收大量紫外光子而被电离.无法准确预测这些对电离贡献的大小.但前面分析已经认为电子直接电离就足以产生充足的离子,所以就可以不再考虑这些电离对离子总量的贡献了.

4 结论和探讨

通过分析,认为钨靶富含杂质,虽然在杂质的种类上可能随具体情况有所不同,但回流离子主要应该来源于靶表面杂质热释放后,被入射电子束直接电离所得;回流离子流满足空间电荷限制流发射而非源限制流发射.

对回流离子来源及特征研究后,至少获得两个有用信息:1) 实验没能观察到回流离子过聚焦效应,有可能是离子回流加速机制存在问题.对比强流二极管中可明确测量的阳极离子流现象,虽然和电子束打靶很相似(把靶视为阳极),但有差别,二极管中有外加的阴阳极电压,而回流离子问题中只有束流自身的空间电荷势;2) 事物总有两面性,如果回流离

子理论成立,也就暗示了一种具有潜力的聚焦手段.选择合适的杂质种类以及含量也就等于选择了合适的聚焦力.采用先清除杂质,后有选择的在靶面上附加合适的杂质的方式来获得需要的离子聚焦力.对于除杂,对钽靶预热到 700 K 左右除杂或是镀金即可(有文献指出钽阳极需加热到 2200K 才有效^[25],还有文献指出钽在 1000—1500 K 具有很强的吸气能力^[26],需小心注意).尤其是后一种方法更为可

行,因为 Au 同样是重金属,不影响转换靶 X 光转换效率,同时其不仅除杂远比 Ta 容易,而且加工性能也远比 Ta 好,容易实现杂质种类的选择.

对回流离子问题的实验研究工作和结果,将另著文发表.

在计算电离截面时得到了 Y-K Kim 教授的热情帮助,在此表示感谢.

参考文献 (References)

- 1 Welch D R, Hughes T P. *Laser and Particle Beam*, 1997, **16**(2): 285—294
- 2 Kwan T J T, Snell C M, Christenson P J. *Physics of Plasmas*, 2000, **7**(5): 2215—2223
- 3 Kwan T J T. Simulations, Experiments and Analysis of Beam Target Interaction. *Proceeding of the 1999 Particle Accelerator Conference*. New York, 1999, 1842—1844
- 4 Kwan T J T. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 2000, **28**(1): 268—270
- 5 CHEN Yu-Jiuan, Caporaso G J, Arthur C P. Controlling Backstreaming Ions from X-Ray Converter Targets with Time Varying Final Focusing Solenoidal Lens and Beam Energy Variation. *Proceedings of Linear Accelerator Conference*. Chicago: NTIS, Springfield, VA, 1998. 472—474
- 6 Caporaso G J, CHEN Yu-Jiuan. Analytic Model of Ion Emission from the Focus of an Intense Relativistic Electron Beam on a Target. *Proceedings of Linear Accelerator Conference*. Chicago: NTIS, Springfield, VA, 1998. 830—832
- 7 Sampayan S, Buckles R et al. Beam-Target Interaction Experiments for Bremsstrahlung Converter Applications. *Proceedings of Particle Accelerator Conference*. New York: IEEE, 1999. 1303—1305
- 8 Guethlein G et al. Faraday Cup Measurements of Ions Backstreaming into a Electron Beam Impinging on a Plasma Plume. *Proceedings of Linear Accelerator Conference*. Monterey, California, 2000. 467—469
- 9 Sampayan S et al. Beam-Target Interaction Experiments for Bremsstrahlung Converter Applications. *Proceedings of Particle Accelerator Conference*. Chicago: IEEE, 2001. 330—332
- 10 Vermare C et al. Experimental Results of Electron Beam Neutralization Induced by A Limited Space-Charge Emission. *Proceedings of Linear Accelerator Conference*. Chicago: NTIS, Springfield, VA, 1998, 394—396
- 11 Vermare C et al. Strong Self - Focusing of a 7.2 MeV Electron Beam Striking an Aluminized Mylar Target. *IEEE Trans. Plasma Sci.*, 1999; **27**(6): 1566—1571
- 12 CHEN S F. Time-Resolved Profile Measurements of High Current Shot-Pulse Electron-Beams. Post-Doctor Research Report, China Academic of Engineer Physics, 2001. 50—52 (in Chinese)
(陈思富. 强烈短脉冲电子束束剖面的时间分辨测量. 中国工程物理研究院流体物理研究所博士后研究报告, 2001. 50—52)
- 13 Oliver B V et al. Beam-Target Interactions in Single and Multi-Pulse Radiography: UCRL-CR-134271. 30—43
- 14 Cuneo M E. *IEEE Trans. On Dielectrics and Electrical Insulation*, 1999, **6**(4): 469—485
- 15 Sanford T W L et al. *J. Appl. Phys.*, 1989, **66**(1): 10—22
- 16 Cuneo M E. *IEEE Trans. on Plasma Sci.*, 1987, **15**(4): 375—383
- 17 Swain D W et al. *Journal of Applied Physics*, 1975, **46**: 4604—4605
- 18 LONG J D, LIN Y Z et al. *HEP & NP*, 2004, **28**(5): 564—568 (in Chinese)
(龙继东, 林郁正等. 高能物理与核物理, 2004, **28**(5): 564—568)
- 19 Roth A. *Vacuum Technology*. Beijing: China Machine Press, 1980. 32—33, 138—142 (in Chinese)
(A. 罗斯. 真空技术. 北京: 机械工业出版社, 1980. 32—33, 138—142)
- 20 WANG Yu-Zhi. *Vacuum Technology*. Chengdu: Publisher of Sichuan People, 1982. 105, 123 (in Chinese)
(王欲知. 真空技术. 成都: 四川人民出版社, 1982. 105, 123)
- 21 Kim Y-K, Rudd M E. *Phys. Rev.*, 1994, **A50**: 3954—3967
- 22 Kim Y-K, Santos J P, Parente F. *Phys. Rev.*, 2001, **A62**: 052710
- 23 Pereira N R. *IEEE Trans. on Plasma Sci.*, 1999, **27**(4): 1169—1174
- 24 YANG Jin-Ji. *Gas Discharge*. Beijing: Science Press, 1983, 106—108 (in Chinese)
(杨津基. 气体放电. 北京: 科学出版社, 1983. 106—108)
- 25 Weber B V, Stephanakis S J et al. Suppression of Ion Emission and Pinching Using Heated Tantalum Anodes in High-Power Electron-Beam Diodes. *Proceedings of BEAM*. Nagaoka, Japan, 2000. 206—209
- 26 Weissler G L, Carlson R W. *Vacuum Physics and Technology*. Beijing: Atomic Energy Press, 1990. 219 (in Chinese)
(G.L. 威斯勒, R.W. 卡尔森. 真空物理和技术. 北京: 原子能出版社, 1990. 219)

Study on Character of the Source of Backstreaming Ions *

LONG Ji-Dong^{2;1)} SHI Jin-Shui² YU Hai-Jun² LIN Yu-Zheng¹

1 (Department of Engineering Physics of Tsinghua University, Beijing 100084, China)

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

Abstract Plasma could be produced when intense electron beams striking on converter target materials, such as Ta. The beam space charge may draw an ion current out of the plasma, which could substantially affect the final focus of beam on the target. This is called backstreaming ions effect. Since focus-spot is a key point for good radiography in X-ray machine research, the backstreaming ions effect gets much concerns. Based on our analysis, it is believed that generally the backstreaming ions are mainly from thermal desorption of contaminant on the Ta target surface. The ion emission is restricted by the space-charge effect, not by the ions source power.

Key words beam-target interaction, beam focus, backstreaming ions, ionization cross section, thermal desorption

Received 19 July 2004

* Supported by Fundamental Research Foundation of National Defense Technology

1) E-mail: longjldong@tsinghua.org.cn