

基于智能算法的 CR39 径迹刻蚀过程模拟^{*}

齐 伟, 贺书凯, 谷渝秋

(中国工程物理研究院 激光聚变研究中心, 四川 绵阳 621900)

摘 要: CR39 可以用于激光等离子物理实验中的离子探测, 并给出离子数目、种类和能量信息。通过采用唯象模型, 利用离子在 CR39 中径迹形成的阻止本领动力学方程以及粒子群智能算法对径迹形成的过程进行了数值化模拟, 研究了 CR39 中离子径迹在刻蚀过程中的演化过程, 获得了入射离子能量和径迹直径、深度的对应关系, 并且发现当离子射程与刻蚀深度相等时, 径迹深度最大, 给出了利用总刻蚀时间计算最大径迹深度对应的临界能量的公式。

关键词: CR39; 激光离子加速; 离子阻止本领; 径迹刻蚀; 粒子群智能算法

中图分类号: O571.1 **文献标志码:** A **doi:**10.11884/HPLPB201931.190088

Intelligent algorithm based simulation of track etching process on CR39 detector

Qi Wei, He Shukai, Gu Yuqiu

(Research Center of Laser Fusion, CAEP, P. O. Box 919-988, Mianyang 621900, China)

Abstract: CR39 detector can be used to detect the ions in laser-plasma physics experiments and to obtain information about the number, kind and energy of incident ions. Using phenomenological model, we numerically simulated the formation process of ion track in CR39 using energy loss dynamics equation and particle swarm optimization (PSO) algorithm thus studied the revolution of the ion track in CR39 during the etching process. The corresponding relationship between ion energy and track diameter and depth was obtained. It is found that when the ion range was equal to the etching depth in CR39, the track depth was the largest. The equation of the critical energy with which the track is the deepest and determined by the etching time was given.

Key words: CR39; laser ion acceleration; ion energy loss; track etching; particle swarm optimization (PSO)

PACS: 06.20.fb; 07.81.+a

在激光离子加速^[1-2]和惯性约束聚变^[3]研究中,重离子的探测是其中重要的研究内容。相比传统的离子探测,由于激光与材料作用过程中,加速的离子束亮度高、成分复杂、束流脉宽短,背景干扰强,因此要求探测设备分辨率高、响应灵敏、可靠性好且抗干扰能力强。CR39 作为常用的一类固体核径迹探测器广泛用于空间离子探测等方面^[4-5],并且由于其只对重离子响应,因而成为了激光离子加速和惯性约束聚变研究中不可或缺的重离子探测器^[6-8]。

重离子在 CR39 中输运时会产生大量的次级电离辐射,对径迹附近材料的分子结构造成破坏。当辐照后的 CR39 经过化学刻蚀,受损区域的分子链会比未受损区域的更容易发生化学反应,其刻蚀速率更快。经过一段时间之后,就会形成一个用光学显微镜可以观察的锥型径迹坑。可以通过对径迹的计数获得离子数量,并根据径迹直径判断入射粒子种类和能量。通常需要采用加速器离子源对 CR39 进行响应标定,并用径迹形成动力学模型进行拟合计算,获得离子能量-径迹直径的关系曲线^[9-10]。目前常用的动力学模型是用离子在 CR39 中的射程建立刻蚀速率方程,通过扫描模型的待定参数并解迭代方程来得到不同参数下径迹直径与能量的关系,并通过与标定数据的方差来确定最优参数^[11-12]。但是这种方法一方面由于不同离子射程与能量的关系不同导致模型的待定参数不能适用于其他种类离子,必须针对各种离子分别进行标定;另一方面由于数值误差并

^{*} 收稿日期:2019-04-02; 修订日期:2019-04-16

基金项目:科学挑战计划项目(TZ2018005);国家重点研发项目(2016YFA0401100)

作者简介:齐伟(1986—),男,博士研究生,从事激光核物理及激光加速中的带电粒子诊断;bosqw7@163.com。

通信作者:谷渝秋(1968—),男,博士,研究员,从事强场等离子体物理、激光等离子体诊断技术等研究;yqgu@caep.cn。

不能保证迭代方程一定可求解,从而使得 CR39 在激光加速和惯性约束聚变研究中的应用中受到一定限制。

本文采用更为基本的刻蚀速率与离子阻止本领关联的动力学方程,通过建立刻蚀过程的唯像模型,使用数值方法模拟径迹形成的整个过程。并使用粒子群智能算法,在特定种类离子的实验数据基础上搜寻刻蚀方程待定参数的最优解。这种方法可以对不同离子建立统一的参数与刻蚀速率方程,不需要对不同离子分别进行标定,同时避免了迭代方程无解的情况。由于是数值模拟,可以观察刻蚀过程的细节,从而获得径迹剖面形状以及刻蚀深度等重要的细节信息。

1 模 型

1.1 径迹形成的理论和唯像模型

在刻蚀过程中,化学溶剂一方面沿着离子径迹方向以径迹刻蚀速度 V_t 对 CR39 进行溶解,一方面在 CR39 初始面往 y 方向和已刻蚀出的坑洞壁上往四周以体刻蚀速度 V_b 进行刻蚀。 V_b 的速度取决于刻蚀温度和 NaOH 的浓度,在固定条件下是恒定的。而 V_t 的速度则与局域的重离子阻止本领成正比,且大于 V_b 。从唯像的角度来看,这个过程和超音速飞机飞行中声波的传播过程是类似的,战机的运动过程就是沿径迹方向的径迹前端的刻蚀过程,声波的传播就是体刻蚀的过程,而 CR39 表面形成的坑洞就是声波波阵面,如图 1 所示。当 CR39 初始面沿 y 方向以 V_b 进行体刻蚀到达刻蚀面时,与波阵面相交的地方就是径迹的边缘,其宽度就是径迹直径。而径迹的深度就是径迹前端与刻蚀面的距离(刻蚀面只决定于 V_b 和刻蚀时间 T)。

在考虑垂直入射的情况下,沿径迹的刻蚀速率为 V_t ,其余方向的刻蚀速率为 V_b ($V_t > V_b$)。一般来说, V_b 只取决于材料本身和刻蚀条件,而 V_t 取决于重离子在局域的“限定能量损失”或者说“初级电离”。事实上,能量低于 350 eV 的低能电子 δ 射线可以破坏掉径迹路径上 CR39 的分子链结构,分子链的受损程度(影响 V_t 大小)取决于这些低能电子的数量。“初级电离”便是假设受损程度是电离的低能电子的数量而非能量的函数关系。但是在我们所研究的数百 keV~数十 MeV 的能区,电子电离造成的阻止本领与“初级电离”的低能电子数量随离子能量的变化关系是一致的^[13-14]。因此为了简化模型,可以假定认为其满足^[15]

$$\frac{V_t}{V_b} = 1 + k \left(\left(\frac{dE}{dx} \right)_{\text{elec}} \right)^m \quad (1)$$

式中: $\left(\frac{dE}{dx} \right)_{\text{elec}}$ 是重离子在材料中不同深度处由于电子电离造成的单位距离的能量损失,即阻止本领,可以采用基于蒙特卡罗方法的离子输运程序 SRIM^[14] 进行计算得到。 V_b , k 和 m 是拟合参数,对于相同刻蚀条件的 CR39 取固定值。需要注意的是,重离子与原子核的弹性源自碰撞造成的核能损对径迹的形成不产生影响,所以不需要考虑。虽然这种计算忽略了离子在输运中的散射和歧离,但当离子能量远大于布拉格峰能量时,这种近似仍然是合理可信的。

1.2 计算模型

程序的目的是通过智能算法,对特定种类重离子在 CR39 中径迹尺寸的标定数据进行拟合,得到公式(1)中待定参数 V_b , k 和 m 的取值,并计算不同离子的径迹尺寸与离子能量的关系曲线。程序分为两个部分:一是计算 V_b , k 和 m 一定时,不同能量离子经过时间 T 在 CR39 上形成的径迹直径,并且与标定数据进行比较计算方差 σ^2 ;二是采用粒子群智能算法(PSO)对参数 V_b , k 和 m 进行扫描,通过迭代快速寻找最小方差,然后利用最优解计算其他离子的径迹尺寸随能量的变化曲线。其中第一部分是程序的核心内容,涉及到将径迹形成的理论和唯像模型转换为计算程序。其最主要的内容是计算特定能量 E_n 的离子在刻蚀过程中,刻蚀到其径迹上不同位置点 y_i 的时刻 T_i ,以及在经过总刻蚀时间 T 后,不同 y_i 处形成的波前与刻蚀面相交弦长的最大值,以此作为 E_n 对应的径迹直径 D_n 。并利用公式

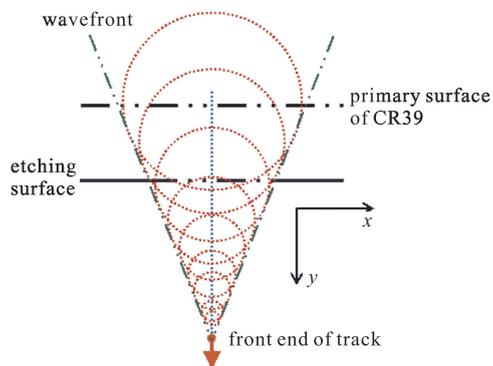


Fig. 1 Phenomenological model of track etching

图 1 径迹刻蚀唯像模型图

$$\sigma^2 = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N \frac{(D_n - D_n^{\text{exp}})^2}{(D_n^{\text{exp}})^2} \quad (2)$$

计算总方差 σ^2 。其中, N 代表标定数据的个数, D_n^{exp} 代表第 n 个标定数据的径迹直径, E_n 代表对应的离子能量。一般来说, 对于每一种 k 和 m 的组合, 都需要计算 N 次 y_i 和 T_i 的对应关系。但是考虑到离子阻止本领仅仅与离子当前能量有关, 而与离子在材料中的输运历史无关, 我们考虑只计算一次能量为上限能量(质子的 $E_{\text{max}} = 20 \text{ MeV}$) 的离子在 CR39 中 y_i 和 T_i 的对应关系, 而计算能量低于 E_{max} 的离子径迹时, 直接使用线性插值从 E_{max} 的数据中进行截取, 从而极大地降低计算量。

因此, 程序第一部分总共分为四步: 计算数据-截取数据-计算直径-计算方差。第一步是将能量为 E_{max} 的带电粒子垂直入射到 CR3 中的射程划分为 I 个数据点, 并通过程序 SRIM 计算出各个数据点处深度 y_i ($i = 0 \sim I$) 的阻止本领 dE^i/dx 。由于重离子阻止本领存在布拉格峰, 因此数据点是不均匀分布, 峰值附近数据点较多, 而平坦区域数据点较少。然后通过公式(1)将数据点 i 的阻止本领数据转换为刻蚀速率 $V_t(i)$, 并利用公式

$$E_i = E_{i-1} - \frac{(y_i - y_{i-1})}{dE^{i-1}/dx}, \quad i = 1 \sim I \quad (3)$$

和

$$T_i = T_{i-1} - \frac{(y_i - y_{i-1})}{V_t^{i-1}}, \quad i = 1 \sim I \quad (4)$$

对数据点的阻止本领和刻蚀速率进行数值积分, 获得数据点 i 对应的离子能量 E_i 和绝对时刻 T_i (以 E_{max} 对应的数据点 T_0 为起始时刻)。

第二步是采用线性插值, 找到特定离子能量 E_n 对应的深度 y_n^0 和绝对时刻 T_n^0 。当总刻蚀时间为 T 时, 径迹前端刻蚀到绝对时刻为 $T_n^{\text{end}} = T_n^0 + T$ 的数据点, 通过线性插值可以得到对应深度 y_n^{end} 。截取深度区间为 $y_n^0 \sim y_n^{\text{end}}$ 的数据点的 y_i, E_i 和 T_i 数据。

第三步, 计算以截取的数据点 y_i 为圆心, $R_i = V_b(T_n^{\text{end}} - T_i)$ 为半径的圆形波前与直线 $y = y_n^0 + V_b T$ 相交部分的长度 L_i , 并取 $D_n = \max(L_i)$ 为能量为 E_n 的离子在 CR39 上形成径迹的直径。

第四步, 利用不同能量 E_n 对应的径迹直径并按照公式(2)计算方差 σ^2 。

程序的第二部分, 是建立 PSO 算法的接口, 通过调用第一部分程序计算 $\sigma^2(V_b, k, m)$ 来进行最优化搜寻。粒子群优化算法是一种进化计算技术, 同遗传算法类似, 是一种基于迭代的优化工具。系统初始化为一组随机解, 通过粒子在解空间追随最优粒子进行迭代搜寻最优值。这种优化方法算法思想比较简单, 用程序实现起来非常方便。最后利用最优解 (V_b, k, m) , 再次调用第一部分程序计算其他种类离子在 CR 上形成径迹的直径、深度与离子能量的关系曲线。

2 计算结果与讨论

2.1 离子能量与径迹直径的对应关系

使用程序对文献[7]中 T 离子的实验数据进行拟合(刻蚀条件: NaOH 浓度为 6 mol/L, 刻蚀温度 80 °C, 刻蚀时间 6 h), 获得了最优解 $V_b = 1.96 \mu\text{m/h}$, $k = 0.11$, $m = 2.06$ 。文献[7]中实验测量的 $V_b = (2.0 \pm 0.1) \mu\text{m/h}$ 。使用最优解对 P, D 和 ^3He 离子的径迹直径进行计算, 结果如图 4 所示。可以看到对 T 离子的拟合效果最好, 与实验数据的误差小于 0.5 μm , P 和 D 离子的误差也不超过 1 μm , ^3He 离子的拟合相对较差, 其峰值

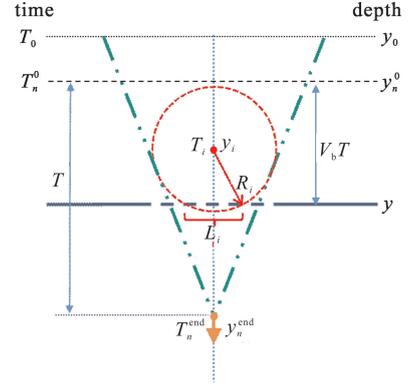


Fig. 2 Picture of track etching process

图 2 径迹刻蚀示意图

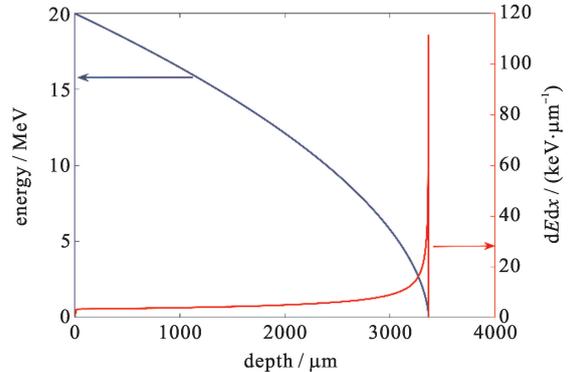


Fig. 3 Depth dependence of energy and energy loss in CR39 for proton with incident energy of 20 MeV

图 3 能量为 20 MeV 的质子入射到 CR39 中, 能量和阻止本领随入射深度的变化曲线

直径误差 $2 \mu\text{m}$ 。这一方面是因为 T 离子的数据较多拟合较好,另一方面 ^3He 离子由于电荷量和原子质量最大,在 CR39 中的阻止本领最大,射程最短,能量歧离和散射最严重,而且在慢化过程中电荷态的变化也最复杂,可以是 0,1,2 多种变化,因此计算得到的阻止本领数据与实际的偏差最大,导致最后径迹直径偏差较大。

2.2 离子能量与径迹深度的对应关系

图 5 是在最优参数下,刻蚀时间为 6 h,不同能量的 P 和 T 离子径迹的剖面图,当离子能量较低时(对于 P 离子,临界能量 $E_{\text{th}}^{\text{P}} < 1.3 \text{ MeV}$,对于 T 离子, $E_{\text{th}}^{\text{T}} < 2.6 \text{ MeV}$),其在 CR39 中的射程较短,在刻蚀还未完成时径迹顶端就已经到达了射程末端,当刻蚀深度超过射程之后,就会以径迹顶端为圆心,以恒定的体刻蚀速率 V_{b} 沿着底端的四周进行“饱和刻蚀”,所以在最后形成的径迹坑顶部形成一个圆形的刻蚀坑,在显微镜下观察会出现中心亮斑的径迹图像^[9]。当离子能量等于临界能量时,其射程刚好与刻蚀深度相等,径迹前端正好到达射程末端,整个刻蚀过程中径迹前端的刻蚀速率都大于 V_{b} ,因此径迹深度相比饱和刻蚀情况更长。而当离子能量大于临界能量时,由于高能离子阻止本领下降,因此在相同的刻蚀时间下,其刻蚀深度相比临界能量时更小。这就是离子能量大于临界能量时径迹深度反而减小的原因。因此,当离子能量等于临界能量时,离子射程与刻蚀深度相等,此时径迹深度最大,见图 6。依据这个结论,如果我们想要计算特定刻蚀时间 T 下离子的临界能量,只需要把径迹末端作为起始时刻进行反向刻蚀 T ,所刻蚀的深度就是临界能量对应的射程。所以我们只需要把公式(4)计算得到的刻蚀时间采用如下处理

$$T'_i = \max(T_i) - T_i, \quad i = 1 \sim I \quad (5)$$

则对应数据点 i 的离子能量 E_i 就是刻蚀时间为 T'_i 的临界能量。

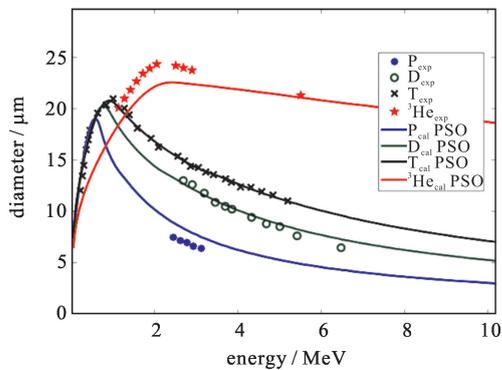
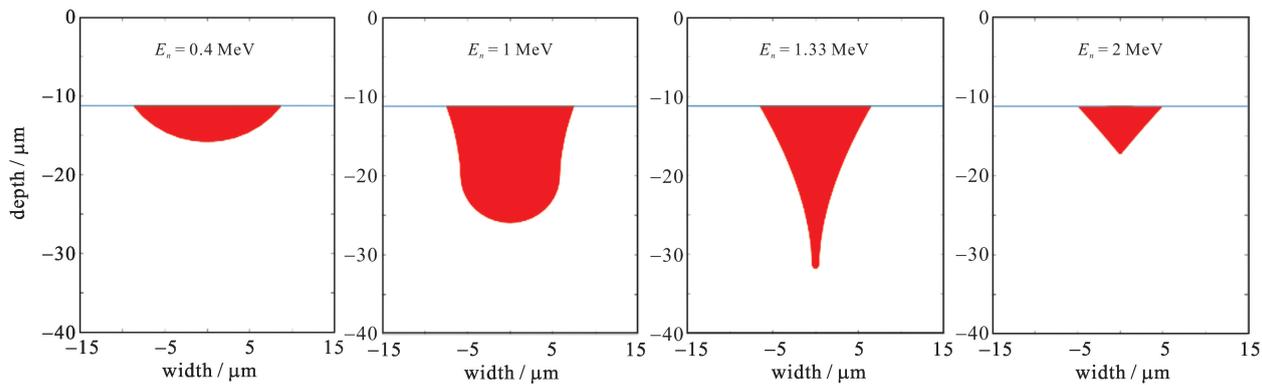


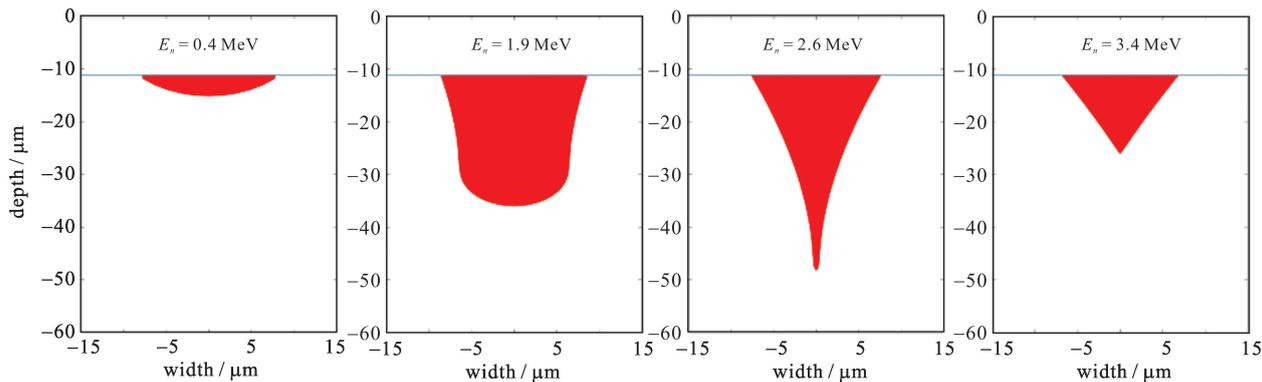
Fig. 4 Relationship of track diameter and ion energy for different kind of particles, the etching time is 6 h

图 4 不同离子径迹直径与能量的关系曲线,刻蚀时间为 6 h

之后,就会以径迹顶端为圆心,以恒定的体刻蚀速率 V_{b} 沿着底端的四周进行“饱和刻蚀”,所以在最后形成的径迹坑顶部形成一个圆形的刻蚀坑,在显微镜下观察会出现中心亮斑的径迹图像^[9]。当离子能量等于临界能量时,其射程刚好与刻蚀深度相等,径迹前端正好到达射程末端,整个刻蚀过程中径迹前端的刻蚀速率都大于 V_{b} ,因此径迹深度相比饱和刻蚀情况更长。而当离子能量大于临界能量时,由于高能离子阻止本领下降,因此在相同的刻蚀时间下,其刻蚀深度相比临界能量时更小。这就是离子能量大于临界能量时径迹深度反而减小的原因。因此,当离子能量等于临界能量时,离子射程与刻蚀深度相等,此时径迹深度最大,见图 6。依据这个结论,如果我们想要计算特定刻蚀时间 T 下离子的临界能量,只需要把径迹末端作为起始时刻进行反向刻蚀 T ,所刻蚀的深度就是临界能量对应的射程。所以我们只需要把公式(4)计算得到的刻蚀时间采用如下处理



(a) P ions



(b) T ions

Fig. 5 Projection plot of tracks for P and T ions with different incident energy E_n , the etching time is 6 h

图 5 刻蚀时间 6 h 时不同入射能量 E_n 的 P 和 T 离子径迹的剖面图

3 结 论

本文利用离子在 CR39 中径迹形成的阻止本领动力学方程,以唯象的超音速战机运动时声波阵面的扩散模型对径迹形成的过程进行了数值化模拟,通过粒子群智能算法对 T 离子的径迹直径与入射离子能量的实验数据进行拟合,给出了拟合参数,并且对 P, D 和 ^3He 离子的实验结果对比,发现数据吻合很好。并计算了对应参数条件下,离子径迹的演化形状,以及能量和径迹深度的对应关系。发现不同能量的离子,其径迹剖面图的形状相差较大,但不同离子的形状具有相同的规律。当离子射程与刻蚀深度相等时,径迹深度最大,并且计算了临界能量与刻蚀时间的关系。

参考文献:

- [1] Wilks S C, Langdon A B, Cowan T E, et al. Energetic proton generation in ultra-intense laser-solid interactions[J]. *Phys Plasmas*, 2000, 8(2):542-549.
- [2] Mora P. Plasma expansion into a vacuum[J]. *Phys Rev Lett*, 2003, 90:185002.
- [3] Park H S, Hurricane O A, Callahan D A, et al. High-adiabat high-foot inertial confinement fusion implosion experiments on the National Ignition Facility[J]. *Phys Rev Lett*, 2014, 112:055001.
- [4] 翟鹏济,唐孝威,王龙,等. CR-39 核径迹探测器及其在核科学等研究领域中的应用[J]. *物理*, 2000, 29(7):397-400. (Zhai Pengji, Tang Xiaowei, Wang Long, et al. CR-39 plastic nuclear track detector and its application in nuclear science. *Physics*, 2000, 29(7):397-400)
- [5] 王兴功,骆亿生,张红,等. CR-39 固体核径迹探测器用于中子测量化学蚀刻参数的优化[J]. *核技术*, 2005, 28(4):319-323. (Wang Xing-gong, Luo Yisheng, Zhang Hong, et al. Optimum condition of chemical etching of CR-39 solid state nuclear track detector for neutron measurement. *Nuclear Techniques*, 2005, 28(4):319-323)
- [6] Li C K, Petrasso R. Stopping of directed energetic electrons in high-temperature hydrogenic plasmas[J]. *Physical Review E*, 2004, 70:067401.
- [7] Seguin F H, Fremje J A, Li C K, et al. Spectrometry of charged particles from inertial-confinement-fusion plasmas[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2003, 74(2):975-995.
- [8] Rygg J R, Seguin F H, Li C K, et al. Proton radiography of inertial fusion implosions[J]. *Science*, 2008, 319(5867):1223-1225.
- [9] 伍波,董克攻,吴玉迟,等. 利用 CR39 上的径迹鉴别激光加速离子产物[J]. *强激光与粒子束*, 2013, 25(2):381-384. (Wu Bo, Dong Kegong, Wu Yuchi, et al. Identification of ion products produced from laser acceleration experiments using tracks in CR39. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, 25(2):381-384)
- [10] 李波均,杨建伦,彭太平,等. CR39 探测器对 5 种能量 α 粒子的响应[J]. *核电子学与探测技术*, 2010, 30(9):1164-1167. (Li Bojun, Yang Jianlun, Peng Taiping, et al. CR39 detector response for alpha irradiation of five energy. *Nuclear Electronics & Detection Technology*, 2010, 30(9):1164-1167)
- [11] 段晓礁,谭志新,兰小飞,等. 用 20~1020 keV 单能质子刻度 CR-39 固体核径迹探测器[J]. *物理学报*, 2010, 59(5):3147-3153. (Duan Xiaojiao, Tan Zhixin, Lan Xiaofei, et al. Calibration of solid state nuclear track detector CR39 with monoenergetic protons. *Acta Physica Sinica*, 2010, 59(5):3147-3153)
- [12] 方美华,魏志勇,黄三玻,等. 纳米尺度上 CR-39 径迹蚀刻动力学研究[J]. *核科学与工程*, 2011, 31(3):263-269. (Fang Meihua, Wei Zhiyong, Huang Sanbo, et al. Chinese Journal of Nuclear Science and Engineering, 2011, 31(3):263-269)
- [13] Kodaira S, Yasuda N, Konishi T, et al. Calibration of CR-39 with atomic force microscope for the measurement of short range tracks from proton-induced target fragmentation reactions[J]. *Radiation Measurements*, 2013, 50:232-236.
- [14] Nikezic D, Yu K N. Formation and growth of tracks in nuclear track materials[J]. *Materials Science & Engineering: R: Reports*, 2004, 46:51-123.
- [15] Hicks D G. Charged-particle spectroscopy: A new window on inertial confinement fusion[D]. Cambridge: Massachusetts Institute of Technology, 1999:103-114.

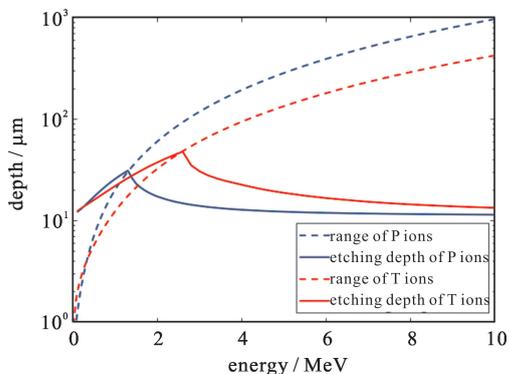


Fig. 6 Energy dependence of range (dashed line) and track depth relative to the primary surface of CR39 (solid line) for P (blue line) and T (red line) ions
图 6 P 和 T 在 CR39 中的射程(虚线),以及刻蚀 6 h 后径迹顶端相对 CR 原始表面的深度(实线)随能量的变化