

考虑原子亚稳态的镱金属蒸发过程模拟研究

赖赣平¹⁾²⁾ 张晓卫^{2)†}

1) (清华大学工程物理系, 北京 100084)

2) (粒子输运与富集技术国防科技重点实验室, 天津 300180)

(2023年4月14日收到; 2023年6月20日收到修改稿)

镱-177是目前全球医用同位素的研究热点之一, 可使用通过电子束物理气相沉积技术 (EB-PVD) 辅助生产和加工的镱-176经由反应堆辐照制得. 金属蒸发过程是EB-PVD的重要一环, 金属原子蒸气的各宏观特征量分布将直接影响后续的沉积镀膜过程. 本文基于直接模拟蒙特卡罗方法, 将原子亚稳态引入碰撞假设, 建立了金属蒸发过程的二维和三维模型, 对是否考虑镱原子亚稳态的金属蒸发过程中各宏观特征量进行分析比较, 并对中心处宏观特征量随狭缝开口大小和蒸发源表面温度的变化特点进行讨论. 研究表明, 原子亚稳态会导致经过束流装置的金属原子蒸气数密度降低、运动速度和速度的离散程度上升, 同时狭缝开口大小和蒸发源表面温度均会引发金属原子蒸气宏观特征量分布的变化. 在二维模型基础上进行的三维模拟结果与其变化一致, 本工作可为电子束金属蒸发过程的实验研究提供参考和指导.

关键词: 直接模拟蒙特卡罗方法, 镱, 原子亚稳态, 金属蒸发**PACS:** 47.45.-n, 51.10.+y**DOI:** 10.7498/aps.72.20230602

1 引言

金属元素镱具有多种同位素, 其中镱-177是目前全球医用同位素的研究热点之一. 镱-177的半衰期为6.64 d, 其发射的 β 射线可应用于肿瘤的放射性靶向治疗, 同时伴随发射的 γ 射线可应用于SPECT显像^[1]. 随着镱-177药物的快速研发和临床研究, 镱-177的市场需求量逐年上升, 掌握镱-177的制取工艺是目前相关领域的重点研究目标^[2-4]. 镱-177可通过反应堆辐照镱-176制得^[5], 镱-176则可使用电子束物理气相沉积技术 (electron beam physical vapor deposition, EB-PVD) 进行辅助生产和加工. EB-PVD是目前制备和加工高熔点金属和非金属材料的重要方法之一, 具有蒸发温度高、镀膜纯度高、热效率高、精密易控等优点, 被广泛应用于航空航天、国防军工等领域, 如钢带表面

镀膜、热障涂层制备等^[6-9]. 金属蒸发过程的目的是将固态金属转变为金属原子蒸气, 一般将其划分为金属在坩埚内的熔化流动和液态金属表面的蒸发膨胀两部分. 金属蒸发过程是EB-PVD的重要环节之一, 金属原子蒸气的热布居分布、密度分布、速度分布、温度分布等各项物理特性分布对于之后的沉积镀膜过程具有一定的影响, 同时与金属蒸气原子的利用率等相互关联^[10].

目前, 国内外已有众多相关学者针对金属蒸发过程进行了大量的理论和实验研究, 包括坩埚内金属熔池和蒸发空间内的金属原子蒸气的各项物性研究. 就金属原子蒸气而言, 熔池表面温度与表面积、熔池表面金属原子蒸气的Knudsen数、电子枪的功率和束宽^[11,12]、背景气体^[13]和束流装置^[14-17]等因素都会对金属原子蒸气的密度、温度、运动速度等宏观物理量产生影响. Fan等^[18]利用元素周期表外推金属蒸气输运系数, 对钷蒸气使用直接模

† 通信作者. E-mail: 2809024720@qq.com

拟蒙特卡罗方法 (direct simulation Monte Carlo, DSMC) 进行模拟, 得到与实验数据相符合的结果. 在现有的理论研究中, 金属原子通常被认为均处于基态, 不考虑其余能级的作用. 然而金属蒸发过程通常需要在较高的温度下进行, 此时由于热布居分布有相当比例的原子处于更高的亚稳态上, 因此研究原子亚稳态对于金属蒸发的影响是十分必要的, 对镱而言更是如此. Balakrishnan 等^[19]研究了电子能级对钛气相沉积的影响, 模拟结果与实验结果较为相符. 谢国锋等^[20]曾对二维平面蒸发的亚稳态原子退激过程进行理论模拟, 得到原子蒸气密度分布、速度分布、温度分布等数据, 但其并未对原子的亚稳态分布进行细致分析讨论, 得到的结果较为粗略.

本文基于 DSMC 方法^[21], 引入考虑原子亚稳态的碰撞假设, 建立金属蒸发过程的二维和三维模型. 基于此模型, 首先考察是否考虑原子亚稳态对金属蒸发过程各项宏观特征量分布的影响, 然后讨论中心位置处金属蒸气各项宏观特征量针对关键参数的变化特点, 最后在二维模拟结果基础上进行三维模拟, 为后续针对金属蒸发过程的研究和实际生产过程起到一定的借鉴和参考作用.

2 物理模型

2.1 蒸发装置与金属蒸发过程简介

蒸发装置主要由坩埚、束流装置、蒸发区域和基底几部分组成. 固态金属放置于坩埚之中, 电子束轰击加热固态金属使之熔化形成液态金属熔池, 熔池表面的金属原子则继续受热蒸发膨胀成为蒸气原子. 金属蒸气原子进入上方蒸发区域后发生剧烈碰撞, 其中一部分原子返回液态金属表面被重新吸收, 另一部分原子则远离蒸发源进一步蒸发膨胀形成金属原子蒸气. 金属原子蒸气通过束流装置的狭缝口形成原子蒸气束流进入蒸发区域, 最终运动到底部或蒸发装置侧壁处发生冷凝并附着于其上.

2.2 碰撞假设

在金属蒸发过程中, 金属原子从液态金属熔池表面进入上方蒸发区域形成金属原子蒸气. 在一定的温度之下, 蒸气原子将会依照 Boltzmann 分布确定其热布居状态, 即在各能级的分布比例. Boltzmann 分布如下式所示^[22]:

$$\frac{N_i}{N_j} = \frac{g_i}{g_j} \exp\left(-\frac{E_i - E_j}{kT}\right), \quad (1)$$

其中, N_i , g_i 和 E_i 与 N_j , g_j 和 E_j 分别为处于第 i 激发态和第 j 激发态的原子数、能级简并度和能级能量, k 为 Boltzmann 常数, T 为金属原子蒸气的温度.

镱的熔点为 1936 K, 沸点为 3668 K. 镱前 5 个能级在 2000—3000 K 温度下的热布居分布比例如图 1 所示, 各能级使用能级 1—5 进行编号, 其中能级 3 和能级 4 的热布居分布比例扩大了 10 倍, 能级 5 的热布居分布比例扩大了 1000 倍.

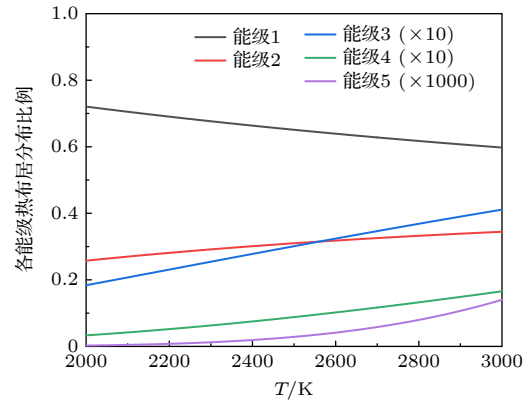


图 1 镱前 5 个能级的热布居分布比例

Fig. 1. Thermal population distribution proportion of lutetium's first five energy levels.

从图 1 可见, 镱能级 5 的热布居分布比例与前 4 个能级相差 2—3 个数量级, 因此在实际计算模拟时只需考虑镱的前 4 个能级即可.

亚稳态能级的寿命也是需要考察的因素. 通常而言, 原子的亚稳态能级寿命为毫秒量级. 如果原子两次碰撞的平均时间间隔远短于原子的亚稳态能级寿命, 则可不考虑其影响; 如果两者相近, 则需对此着重考虑; 如果远大于能级寿命, 则考虑亚稳态能级已无实际意义. 结合实际工况的具体讨论见 3.2 节.

两个原子的非弹性碰撞满足动量守恒和能量守恒, 二维非弹性碰撞的能量变化示意图如图 2 所示. 在质心坐标系中, 存在如下的能量守恒关系:

$$E_i + E_j + E_k = E_{i'} + E_{j'} + E_{k'}, \quad (2)$$

其中, i , j 与 i' , j' 分别为两原子碰撞前后各自的能级, E_i , E_j 与 $E_{i'}$, $E_{j'}$ 分别为各能级的能量, E_k 和 $E_{k'}$ 分别为两原子碰撞前后相对于质心系的总动能.

碰撞后两原子所处的新能级不确定, 可视作为一个概率事件. 为确保两原子碰撞后相对于质心系的总动能 E'_k 非负, 使碰撞过程具有实际物理意义,

需要对碰撞后两原子所处的能级 i' 和 j' 进行限制. 碰撞后两原子所处的能级 i' 和 j' 的概率 $P(i', j')$ 可以通过下式进行计算:

$$P(i', j') = \begin{cases} 0, & E_{i'} + E_{j'} > E_i + E_j + E_k, \\ \frac{g_{i'} g_{j'}}{\sum_{E_m + E_n \leq E_i + E_j + E_k} g_m g_n}, & E_{i'} + E_{j'} \leq E_i + E_j + E_k, \end{cases} \quad (3)$$

其中, $\sum_{E_m + E_n \leq E_i + E_j + E_k} g_m g_n$ 表示所有满足 E'_k 非负的可能的碰撞结果的能级简并度的乘积之和.

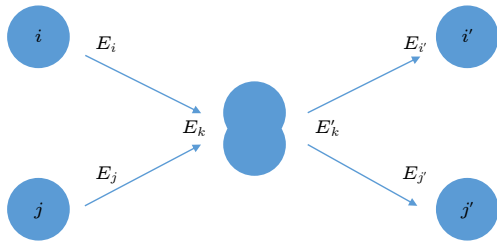


图 2 二维非弹性碰撞的能量变化示意图

Fig. 2. Schematic diagram of the energy change in a two-dimensional inelastic collision.

利用 (3) 式进行随机抽样, 即可确定碰撞后两原子所处的能级 i' 和 j' . 之后再利用 (2) 式, 即可得到两原子碰撞后相对于质心系的总动能 E'_k , 进而可求出两原子碰撞后的相对速度大小 $|v'_r|$. 最后对空间进行各向同性分布抽样, 即可确定相对速度 v'_r 的方向.

2.3 宏观特征量的计算方法

本文主要考察的宏观特征量包括金属原子蒸气的数密度 n 、总运动速度的离散程度 T 和 x , y , z 方向平均速度 u_x , u_y , u_z . 三者可分别反映金属原子蒸气的空间分布状态、热运动状态和平动状态. 具体计算公式^[23] 分别为

$$n = \frac{MN}{fV}, \quad (4)$$

$$T = \frac{m}{3k} \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (v_{xi}^2 + v_{yi}^2 + v_{zi}^2) - u_x^2 - u_y^2 - u_z^2 \right], \quad (5)$$

$$u_x = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N v_{xi}, \quad u_y = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N v_{yi}, \quad u_z = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N v_{zi}, \quad (6)$$

其中, M 为每个模拟分子所代表的真实蒸气原子数, N 为采样得到的总模拟分子数, f 为采样次数, V 为空间体积, m 为金属蒸气原子质量, $v_i = (v_{xi}, v_{yi}, v_{zi})$ 为第 i 个模拟分子的运动速度. 为便于后续分析与讨论, 进行归一化处理, 得到

$$\begin{aligned} n^* &= \frac{n}{n_S}, \quad T^* = \frac{T}{T_S}, \quad u_x^* = \frac{u_x}{v_S}, \\ u_y^* &= \frac{u_y}{v_S}, \quad u_z^* = \frac{u_z}{v_S}, \end{aligned} \quad (7)$$

其中, n_S , T_S 和 v_S 分别为蒸发源表面的模拟分子数密度、温度和模拟分子正方向平均速度. 为方便叙述, 后文统一将归一化符号“*”略去.

3 模拟结果

3.1 金属蒸发模型参数

二维模型可以清晰展现出各宏观特征量的空间分布情况和关键参数对金属原子蒸气的影响, 得到定性的分析结果. 在此基础上搭建的三维模型可为后续电子束金属蒸发过程的实验研究提供理论支持.

二维和三维模型示意图如图 3 所示. 由于整个二维模型为轴对称结构, 因此实际的模拟区域为右半部分, 另一半区域的模拟结果通过镜像得到. 蒸发装置下方为坩埚, 坩埚上表面中央设置有一个长度为 a 的蒸发源. 以蒸发源的尺寸 a 作为基准, 整体的蒸发装置模拟蒸发区域为一个宽度和高度分别为 $20a$ 和 $40a$ 的矩形. 蒸发源上方设置有一个宽度和高度均为 $10a$ 的矩形束流装置, 束流装置分为侧壁和上壁两部分, 并将面对蒸发源的一侧定义为内侧, 另一侧定义为外侧. 束流装置上方设置有一个宽度为 a 的狭缝. 三维模型则是在二维模型的基础之上沿 y 轴正方向进行延展, 整个模型基于 x 轴和 y 轴对称, 因此实际的模拟区域为整个区域的

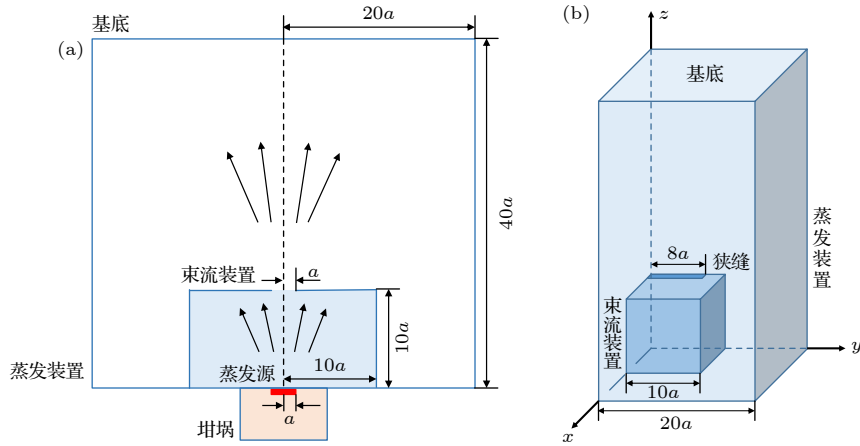


图 3 二维和三维模型示意图 (a) 二维模型; (b) 三维模型

Fig. 3. Schematic diagram of two-dimensional and three-dimensional models: (a) Two-dimensional model; (b) three-dimensional model.

1/4, 其余区域的模拟结果通过镜像得到. 此时, 蒸发源为一个长度和宽度分别为 a 和 $0.4a$ 的矩形, 狭缝为一个长度和宽度分别为 $8a$ 和 a 的矩形. 在 y 轴正方向上, 蒸发装置尺寸为 $20a$, 束流装置尺寸为 $10a$. 与蒸发源表面蒸气原子的平均自由程相比, a 大致相当于 1000 倍的平均自由程长度.

二维模拟计算分为考虑镧元素原子亚稳态和不考虑镧元素原子亚稳态两种工况. 蒸发源的表面温度为 T_S , 蒸发源表面的蒸气原子速度分布使用方向为远离蒸发源表面、温度为 T_S 的半边 Maxwell 分布^[24], 蒸发装置和束流装置壁面温度均为 $0.5T_S$, 蒸发装置内壁和束流装置外侧壁面均为完全吸收边界, 束流装置内侧壁面和底面的吸收率为 0.8. 本文使用的蒸气原子碰撞模型为变径硬球 (variable hard sphere, VHS) 模型. 二维模型总网格数为 20000, 三维模型总网格数为 2000000, 时间步长为 5×10^{-8} s, 模拟原子蒸气于第 40000 步达到稳定并开始采样, 二维模型总模拟步数为 200000, 三维模型总模拟步数为 300000. 模拟原子蒸气达到稳定时, 二维模型总宏粒子数为 40000—50000, 三维模型总宏粒子数约为 120000.

3.2 二维模拟结果

在二维模型两种工况之下, 金属原子蒸气的数密度 n 、总运动速度的离散程度 T , x 方向平均速度 u_x 和 z 方向平均速度 u_z 的空间分布如图 4 所示. 为便于进行比较, 每张图的左半部分为不考虑镧原子亚稳态的模拟结果, 右半部分为考虑镧原子亚稳态的模拟结果.

从图 4 可以观察到金属原子蒸气在蒸发装置中的运动具有明显的特征. 当蒸发源达到一定温度之后, 大量金属原子脱离液态金属表面形成金属原子蒸气, 此处的原子蒸气具有极高的数密度. 原子蒸气在蒸发源上方发生剧烈碰撞, 其中一部分原子蒸气返回液态金属表面被重新吸收, 另一部分则远离蒸发源并进一步膨胀, 导致原子蒸气的运动速度增大, 同时原子蒸气的数密度减小. 此时原子蒸气的平动动能主要由内能转化而来, 因此原子蒸气的速度离散程度也逐渐下降. 由于束流装置阻挡, 狭缝附近的束流装置内侧有较多的蒸气原子囤积, 导致原子蒸气数密度升高. 原子蒸气被束流装置阻挡之后, 一部分原子蒸气被束流装置吸收, 其余原子蒸气则被反射回束流装置腔内. 这部分被反射的原子蒸气与其他原子蒸气发生碰撞, 使得原子蒸气的运动速度发生剧烈变化, 导致原子蒸气的速度离散程度明显升高. 束流装置的侧壁和上壁分别对原子蒸气 x 和 z 方向平均速度产生了较大的约束作用. 当金属原子蒸气通过狭缝之后, 金属原子蒸气的宏观特征量如速度、数密度、速度的离散程度等变化逐渐减小, 形成稳定的金属原子蒸气束流, 并最终运动到底部或蒸发装置内壁发生冷凝附着于其表面.

可以看出, 在考虑原子亚稳态之后, 蒸发源处竖直方向上数密度的值明显降低; 原子蒸气在中心束流处速度的离散程度明显升高, 同时其在竖直方向上的变化幅度明显大于水平方向; 原子蒸气 x 和 z 方向平均速度均有一定程度的提升, 后者的提升更为显著. 出现该现象的原因是, 原先处于高能级的蒸气原子经过大量的碰撞, 能级能量逐渐转换为

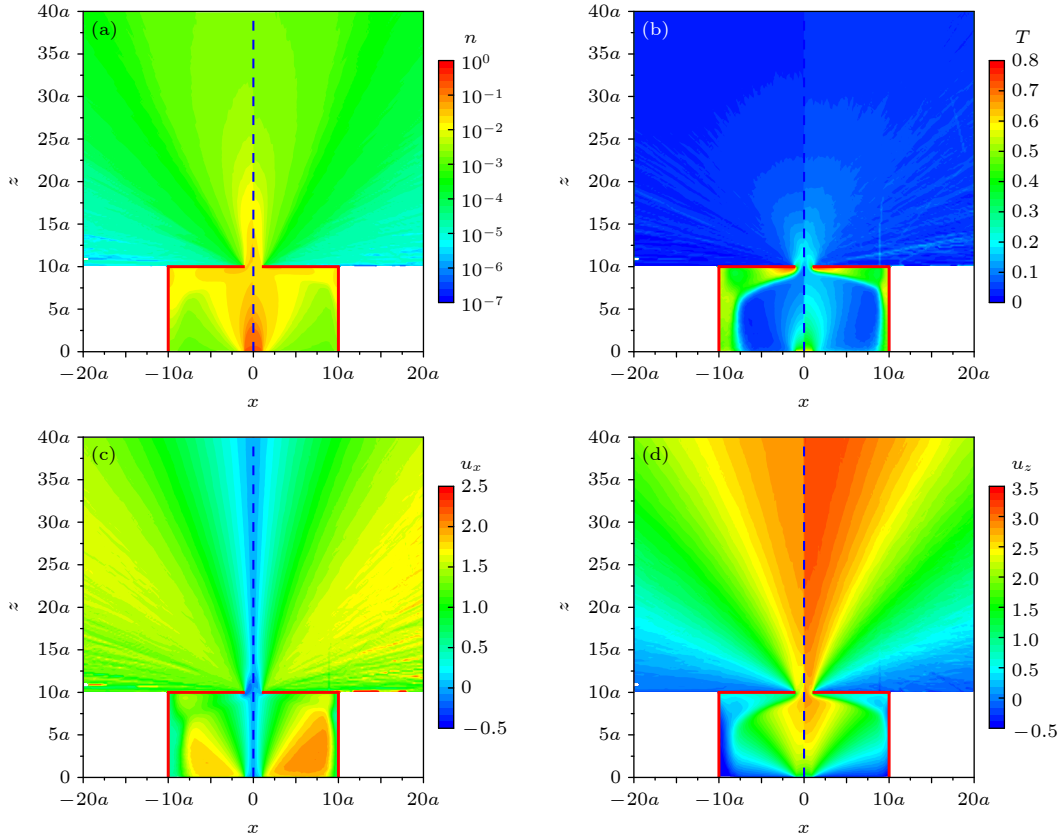


图 4 金属原子蒸气各宏观特征量的二维空间分布 (左为不考虑原子亚稳态, 右为考虑原子亚稳态) (a) 数密度 n ; (b) 总运动速度的离散程度 T ; (c) x 方向平均速度 u_x ; (d) z 方向平均速度 u_z

Fig. 4. Two-dimensional spatial distribution of macroscopic characteristic quantities of metal atomic vapor (left is not considering atomic metastable states, right is considering atomic metastable states): (a) Number density n ; (b) the discrete degree of total motion velocity T ; (c) average velocity u_x in the x -direction; (d) average velocity u_z in the z -direction.

原子蒸气的平动动能和热运动动能, 这体现为原子蒸气平动速度的提升和热运动的加剧. 是否考虑亚稳态并不会影响从蒸发源处进入的蒸气原子数目, 而考虑原子亚稳态之后更高的 z 方向平均速度导致原子蒸气在竖直方向上的数密度减小. 束流装置内侧附近的速度离散程度在考虑能级亚稳态之后出现了一定程度的降低, 这是因为有部分原子蒸气的平动动能转化为蒸气原子的能级能量而不是原子蒸气的热运动动能.

在蒸发源表面温度为 T_s 时, 镱考虑原子亚稳态的能级占比分布图如图 5 所示. 从图 5 可以看出, 在蒸发区域内, 绝大部分蒸气原子处于能级 1 即基态, 各亚稳态主要出现于蒸发源表面和束流装置上壁及侧壁内侧, 尤其在束流装置拐角处具有较高的占比. 这是因为, 蒸发源表面的高能态原子主要来源于出射原子热布居分布比例符合 Boltzmann 分布的蒸发源, 随着碰撞的发生高激发态的蒸气原子逐渐退回基态, 蒸气原子的亚稳态能级能量转化

为原子蒸气的平动动能和热运动动能; 束流装置内侧的高能态原子则来源于被束流装置阻挡反射的原子蒸气, 这部分原子蒸气与未反射原子蒸气相比具有较大的相对运动速度, 导致碰撞之后蒸气原子具有足够的能量激发到高能态, 此时能量由原子蒸气的动能重新转化为蒸气原子的亚稳态能级能量.

根据 (2) 式可知, 蒸气原子的能级能量和原子蒸气的相对运动动能可以随着碰撞发生转移, 在碰撞越剧烈的区域能量转移得越充分. 在经过大量的碰撞以及束流装置的整流之后, 原子蒸气转变为各物理参数相近的金属原子蒸气束流. 由于原子蒸气之间的相对速度减小, 相对运动动能将不足以支撑蒸气原子跃迁到高能级, 使得越来越多的蒸气原子处于基态能级.

束流装置上壁外侧区域的蒸气原子则主要来源于被束流装置阻挡反射的原子蒸气, 其有相当比例处于亚稳态能级上, 这部分蒸气原子被中心的蒸气束流带动从而沿着狭缝口边缘逸出. 之后中心原

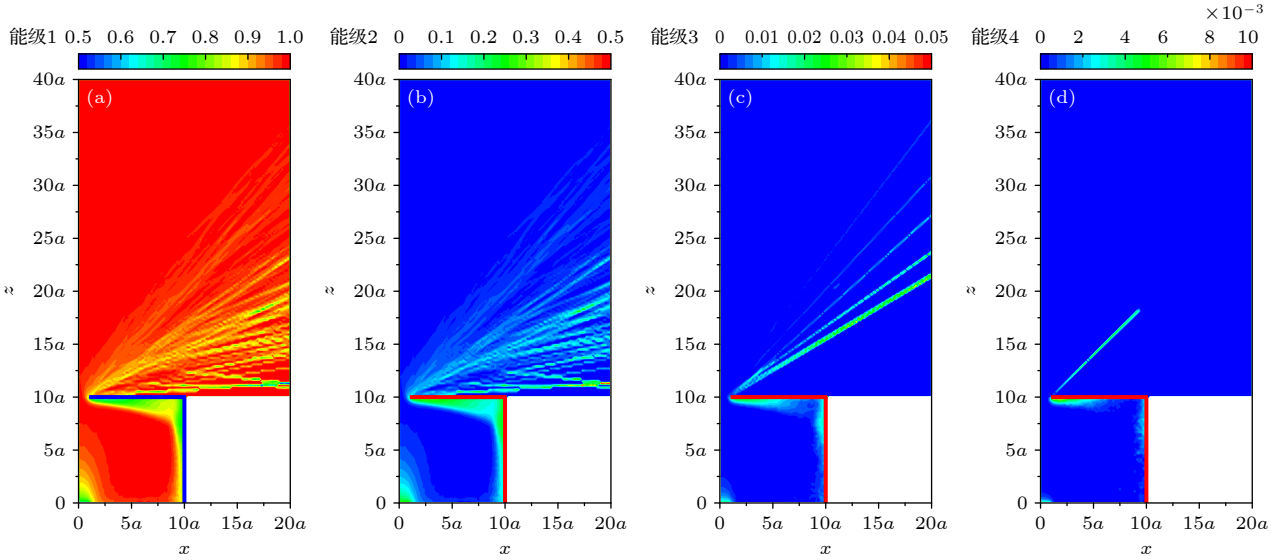


图 5 各能级占比分布图 (a) 能级 1; (b) 能级 2; (c) 能级 3; (d) 能级 4

Fig. 5. Layout of the proportion of each energy level: (a) Energy level 1; (b) energy level 2; (c) energy level 3; (d) energy level 4.

子蒸气束流在狭缝开口处发生剧烈碰撞. 这部分蒸气原子中向东流方向运动的参与到碰撞之中逐渐回归基态; 向侧向运动的蒸气原子则由于侧向位置的数密度较低, 发生碰撞较少, 得以能够保持住亚稳态能级继续向侧向运动, 这在图 5 中表现为处于亚稳态能级的蒸气原子向侧向运动.

最后, 在此对亚稳态能级寿命对模拟结果的影响进行评估. 本文所讨论的工况在不同位置处的平均自由程有较大差异. 在蒸发源表面, 蒸气原子的平均自由程约为 10^{-5} m, 在狭缝开口上方约为 10^{-3} m, 原子蒸气的运动速度数量级约为 10^2 m/s, 因此蒸气原子两次碰撞的平均时间间隔为 10^{-4} — 10^{-2} ms, 这一般短于亚稳态能级寿命. 因此, 在束流装置内部以及中心蒸气束流处可不考虑亚稳态能级寿命对蒸气原子碰撞的影响. 而在侧面数密度较低的区域, 可能会出现蒸气原子运动时间间隔超出亚稳态能级寿命的情况, 但此区域对本文的重点研究内容关系较低, 因此本模拟可不考虑亚稳态能级寿命的影响.

3.3 狭缝开口大小对原子蒸气宏观特征量的影响

根据金属真空蒸发的特点可知, 在蒸发源中心位置处沿着垂直于蒸发源表面方向上的宏观特征量变化最为显著. 为讨论狭缝开口大小对原子蒸气宏观特征量的影响, 取蒸发源表面温度为 T_s , 设置狭缝开口大小分别为 a , $1.5a$ 和 $2a$, 以及是否考虑

原子亚稳态共 6 种工况. 中心处的金属原子蒸气在 6 种工况之下的数密度 n 、总运动速度的离散程度 T 和 z 方向平均速度 u_z 如图 6 所示. 图中虚线为狭缝所在位置.

从图 6 可以看出, 各宏观特征量受到原子亚稳态影响的变化特点与前文的结果一致, 即数密度降低、总运动速度的离散程度和 z 方向平均速度升高. 在束流装置内部, 仅狭缝开口大小不同的金属原子蒸气的各项宏观特征量基本一致; 而在通过狭缝之后, 这几个宏观特征量出现了反常的突起现象, 突起随着狭缝开口的收窄而逐渐向狭缝位置靠近并越发明显, 并且在考虑原子亚稳态之后突起程度有所降低; 当狭缝开口大于 $2a$ 后, 反常突起基本消失. 这是因为当狭缝开口较小时, 将有大量的原子蒸气受到阻挡反射而沿着狭缝边沿飞出, 这些原子蒸气的运动方向偏向于中心位置收束, 导致在通过狭缝之后原子蒸气的数密度上升. 同时随着狭缝开口的收窄, 这些原子蒸气的运动方向偏转也逐渐增大, 导致突起部位越发靠近狭缝位置. 随着金属原子蒸气的数密度增大, 原子蒸气之间的碰撞更加频繁, 使得原子蒸气的运动更加无序, 这体现在突起部位原子蒸气的总运动速度的离散程度的上升和 z 方向平均速度的下降^[25]. 而在考虑原子亚稳态之后, 在突起部位部分发生碰撞的原子蒸气的动能转化为蒸气原子的亚稳态能级能量, 因此突起程度均有所削减.

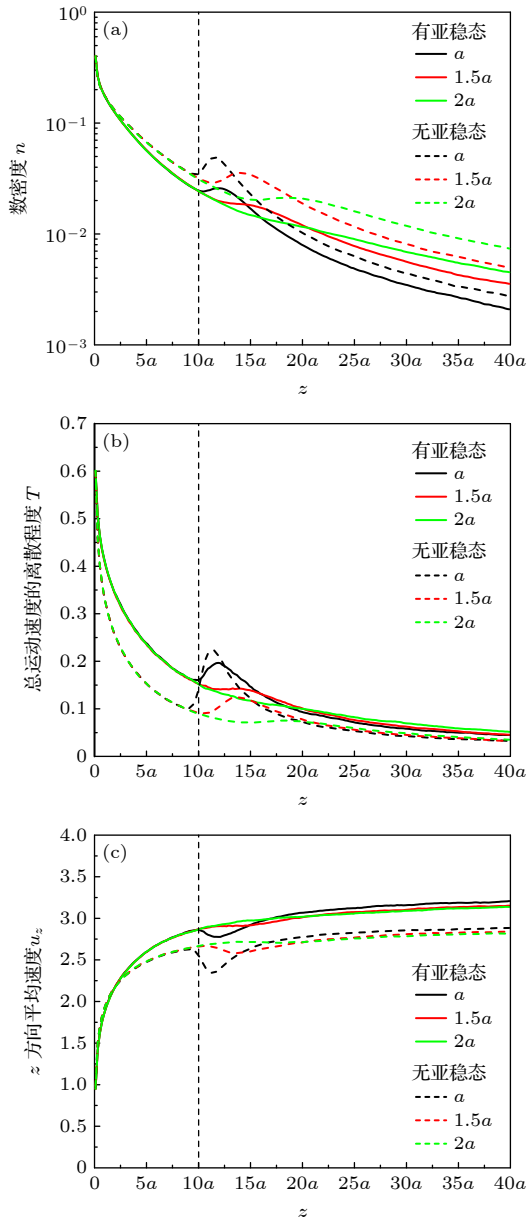


图6 金属原子蒸气在蒸发源中心位置处的宏观特征量变化曲线(不同狭缝开口大小) (a) 数密度 n ; (b) 总运动速度的离散程度 T ; (c) z 方向平均速度 u_z

Fig. 6. Variation curves of macroscopic characteristic quantities of metal atomic vapor at the center of the evaporation source (different slit opening sizes): (a) Number density n ; (b) the discrete degree of total motion velocity T ; (c) average velocity u_z in the z -direction.

3.4 蒸发源表面温度对原子蒸气宏观特征量的影响

为讨论蒸发源表面温度对原子蒸气宏观特征量的影响, 取狭缝开口大小为 a , 设置蒸发源表面温度分别为 T_S , $1.125T_S$ 和 $1.25T_S$, 以及是否考虑原子亚稳态共 6 种工况. 中心处的金属原子蒸气在 6 种工况之下的数密度 n 、总运动速度的离散程度

度 T 和 z 方向平均速度 u_z 如图 7 所示. 图中虚线为狭缝所在位置.

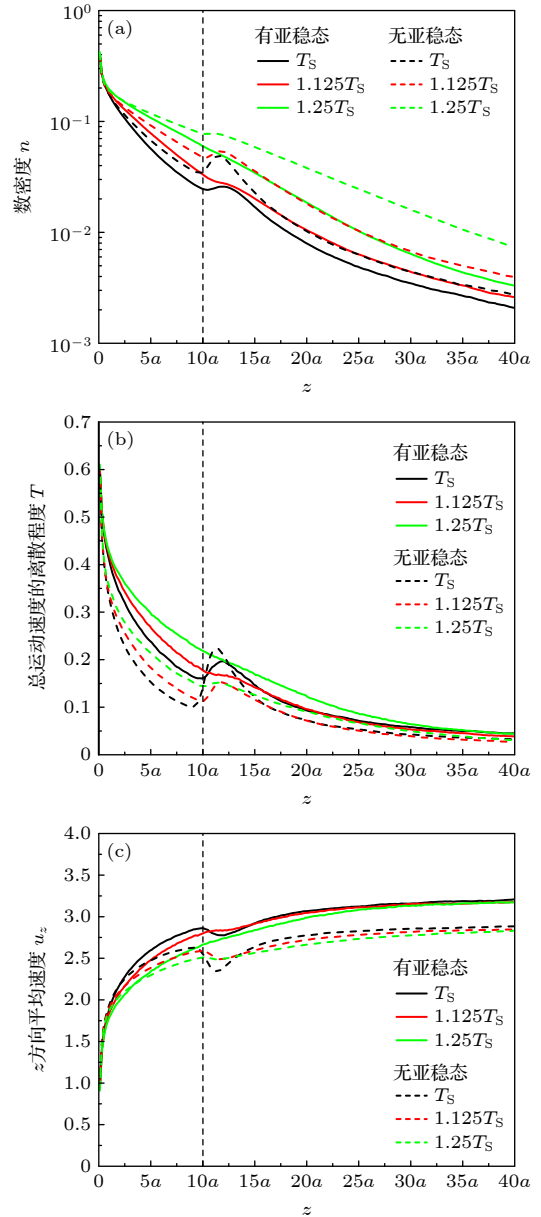


图7 金属原子蒸气在蒸发源中心位置处的宏观特征量变化曲线(不同蒸发源表面温度) (a) 数密度 n ; (b) 总运动速度的离散程度 T ; (c) z 方向平均速度 u_z

Fig. 7. Variation curves of macroscopic characteristic quantities of metal atomic vapor at the center of the evaporation source (different surface temperatures of evaporation source): (a) Number density n ; (b) the discrete degree of total motion velocity T ; (c) average velocity u_z in the z -direction.

从图 7 可以看出, 随着蒸发源表面温度的上升, 金属原子蒸气的数密度下降速度减缓, 总运动速度的离散程度升高, z 方向平均速度降低, 同时在通过狭缝之后反常突起逐渐减弱. 出现该现象的

原因是, 蒸发源表面温度的上升意味着蒸发速率的增大和蒸气原子在亚稳态能级上布居分布比例的提升. 蒸发源温度升高后, 相同时间有更多的蒸气原子从蒸发源表面进入蒸发源上方中心位置处, 同时伴随有更多被束流装置阻挡反射后的原子蒸气回到中心位置, 因此在此区域原子蒸气的数密度能够比温度升高之前下降速度减缓; 同时由于反射的原子蒸气与其余原子蒸气的混合碰撞更为剧烈, 导致原子蒸气总运动速度的离散程度升高以及 z 方向平均速度降低. 狭缝开口处的异常突起是由于原子蒸气束流受到狭缝约束被迫收窄, 导致在狭缝开口处蒸气束流的数密度上升、碰撞加剧进而导致局部出现 z 方向平均速度下降以及总运动速度的离散程度上升. 当蒸发源温度升高后, 在蒸发源上方原子蒸气碰撞加剧, 原子蒸气的数密度分布更为集中, 分析数密度分布数据可以发现狭缝开口处大

部分原子蒸气更加贴近中心位置, 被阻挡改变运动方向的原子蒸气比例降低, 狭缝约束作用减弱, 蒸气束流得以维持原有状态, 这即体现为异常突起逐渐消解.

3.5 三维模型结果

在三维模型工况之下, 金属原子蒸气的数密度 n 、总运动速度的离散程度 T 和 x 、 y 、 z 方向平均速度 u_x 、 u_y 、 u_z 的空间分布如图 8 所示.

从图 8 可以看出, 由于三维模型狭缝开口为长度为 $8a$ 、宽度为 a 的矩形, 因此在 x 方向和 y 方向上各宏观特征量的空间分布特点具有显著差异, 在 x 方向上各宏观特征量主要集中于中心束流, 而在 y 方向上则更加逸散. 这是因为, 在 x 方向上, 窄狭缝口使得原子蒸气束流更为收紧, 大部分蒸气原子在束流内以相近的运动状态向上方运动, 导致各宏

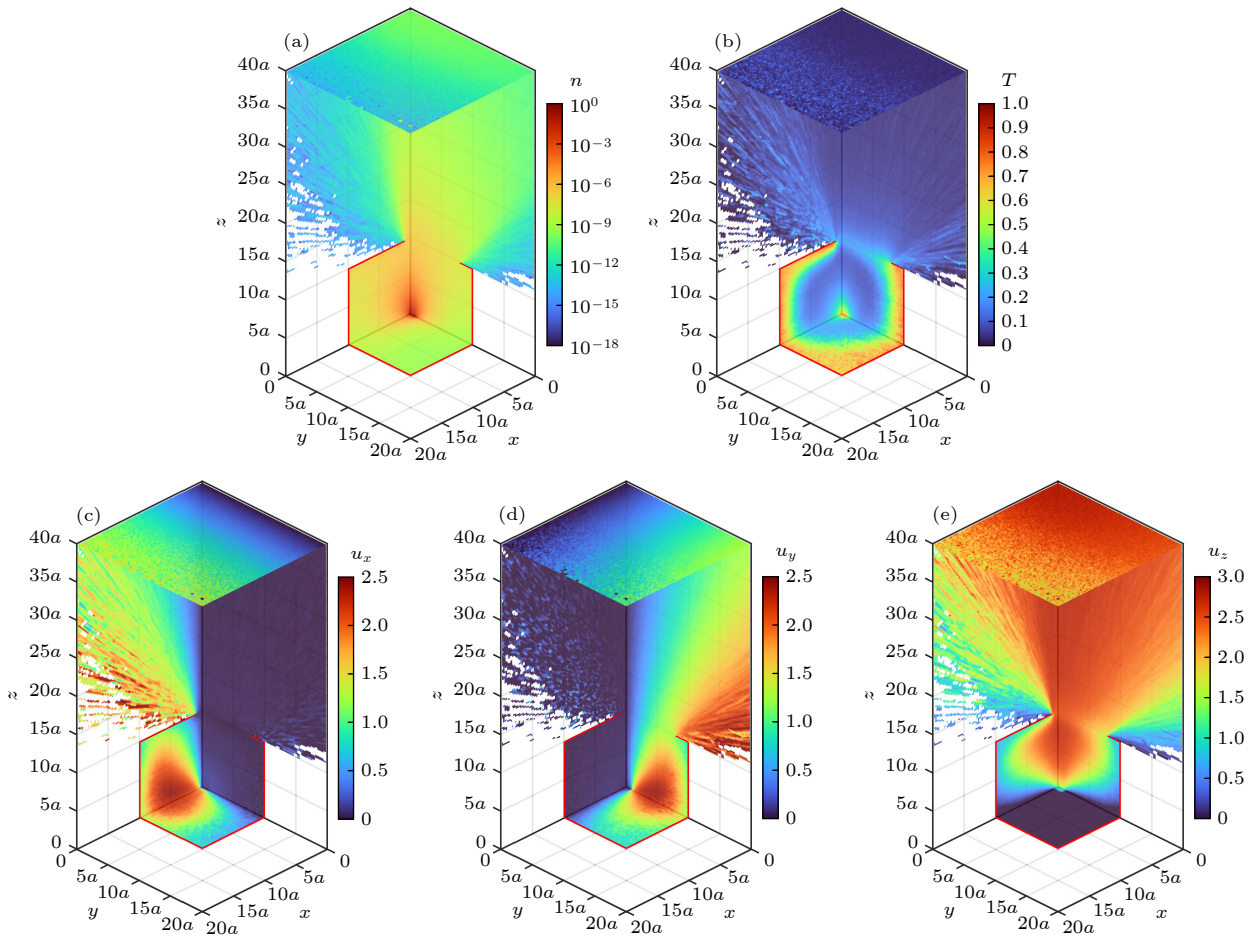


图 8 金属原子蒸气各宏观特征量的三维空间分布 (a) 数密度 n ; (b) 总运动速度的离散程度 T ; (c) x 方向平均速度 u_x ; (d) y 方向平均速度 u_y ; (e) z 方向平均速度 u_z

Fig. 8. Three-dimensional spatial distribution of macroscopic characteristic quantities of metal atomic vapor: (a) Number density n ; (b) the discrete degree of total motion velocity T ; (c) average velocity u_x in the x -direction; (d) average velocity u_y in the y -direction; (e) average velocity u_z in the z -direction.

观特征量空间分布相对集中. 狭缝 x 方向开口与二维模拟尺寸相当, 因此在这个方向上各宏观特征量的分布特征与之前的模拟结果相近. 而在 y 方向上, 极宽的狭缝开口几乎已经无法对向上运动的原子蒸气产生明显影响, 具有侧向速度的原子蒸气可以较少受到狭缝约束而继续侧向运动, 这与直接不添加束流装置的空间分布十分接近. 在 3.3 节中已经讨论过狭缝开口大小对宏观特征量的影响, 当狭缝开口大于 $2a$ 后, 反常突起现象近乎消失, 束流装置约束作用将大打折扣.

与二维模拟的结果相比, 三维模拟结果的数据分布数量级和空间分布形态均呈现出一致的变化规律. 三维模型可为金属原子蒸发的后续研究和实际实验和生产过程提供参考和指导.

4 结 论

本文基于 DSMC 方法, 就金属镱蒸发过程中各宏观特征量受到原子亚稳态的影响进行数值模拟. 本文将原子亚稳态纳入原子碰撞假设之中, 构建了镱原子蒸气蒸发过程的二维和三维模型, 计算模拟了考虑原子亚稳态条件下的金属蒸发过程, 得出结论如下: 考虑原子亚稳态之后, 在束流装置上方金属原子蒸气的数密度降低、运动速度和速度的离散程度上升, 同时金属原子蒸气宏观特征量分布与狭缝开口大小和蒸发源表面温度均有关联. 在此基础上建立的三维模拟的结果与二维模型呈现出一致的变化规律, 为电子束金属蒸发过程的实验研究提供了一定的参考和指导.

参考文献

- [1] Zhuo L G, Yang Y C, Yue H D, Xiong X L, Wang G Q, Wang H L, Yang L, Lin Q C, Chen Q P, Tu J, Wei H Y 2022 *J. Isot.* **35** 217 (in Chinese) [卓连刚, 杨宇川, 岳海东, 熊晓玲, 王关全, 王海麟, 杨林, 林青川, 陈琪萍, 涂俊, 魏洪源 2022 *同位素* **35** 217]
- [2] Bournaud C, Kelly A, Hindié E, Tenenbaum F, Faivre-Chauvet A, Courbon F, Taieb D, Dierickx L O, Coriat R, Ansquer C 2017 *Med. Nucl.* **41** 42
- [3] Strosberg J, El-Haddad G, Wolin E, Hendifar A, Yao J, Chasen B, Mittra E, Kunz P L, Kulke M H, Jacene H, Bushnell D, O'Doriso T M, Baum R P, Kulkarni H R, Caplin M, Lebtahi R, Hobday T, Delpassand E, Van Cutsem E, Benson A, Srirajaskanthan R, Pavel M, Mora J, Berlin J, Grande E, Reed N, Seregini E, Öberg K, Lopera Sierra M, Santoro P, Thevenet T, Erion J L, Ruzniowski P, Kwekkeboom D, Krenning E, NETTER-1 Trial Investigators 2017 *N. Engl. J. Med.* **376** 125
- [4] Peng S M, Yang Y C, Xie X, Qian D Z 2020 *Chin Sci Bull* **65** 3526 (in Chinese) [彭述明, 杨宇川, 谢翔, 钱达志 2020 *科学通报* **65** 3526]
- [5] Hu Y J, Wang L, Wu J R, Li B, Luo N, Chen Y M, Zeng J J, Sun Z Z, Jia Z J, Zhang J S 2023 *J. Isot.* **36** 83 (in Chinese) [胡映江, 王磊, 吴建荣, 李波, 罗宁, 陈云明, 曾俊杰, 孙志中, 贾致军, 张劲松 2023 *同位素* **36** 83]
- [6] Zhang S H, Wang Q M, Zheng J 2020 *Principle and Application of Vapor Deposition Technology* (Beijing: Metallurgical Industry Press) pp36, 37 (in Chinese) [张世宏, 王启民, 郑军 2020 *气相沉积技术原理及应用* (北京: 冶金工业出版社) 第 36, 37 页]
- [7] Lai Q, Li J H, Wu E H, Cui Y, Li L, Liao X J 2020 *Iron, Steel, Vanadium, Titanium* **41** 76 (in Chinese) [赖奇, 李俊翰, 吴恩辉, 崔晏, 李亮, 廖先杰 2020 *钢铁钒钛* **41** 76]
- [8] Yang G, Liu H, Wang D D, Luo L P, Lv X M, Qi Y 2021 *Vacuum (Shenyang, China)* **58** 81 (in Chinese) [杨光, 刘欢, 王丁丁, 罗立平, 吕绪明, 祁阳 2021 *真空* **58** 81]
- [9] Teng X D, Peng H, Li L H, Guo H B, Gong S K 2023 *Aeronautical Manufacturing Technology* **66** 40 (in Chinese) [滕晓丹, 彭徽, 李刘合, 郭洪波, 宫声凯 2023 *航空制造技术* **66** 40]
- [10] Wang D W 1999 *Theory and Application of Laser Isotope Separation* (Beijing: Atomic Energy Press) pp338—340 (in Chinese) [王德武 1999 *激光分离同位素理论及其应用* (北京: 原子能出版社) 第 338—340 页]
- [11] Xie G F, Wang D W, Ying C T 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 584 (in Chinese) [谢国锋, 王德武, 应纯同 2002 *物理学报* **51** 584]
- [12] Xie G F, Wang D W, Ying C T 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2286 (in Chinese) [谢国锋, 王德武, 应纯同 2002 *物理学报* **51** 2286]
- [13] Zhai R 2019 *M. S. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [翟蕊 2019 *硕士学位论文* (北京: 清华大学)]
- [14] Lu X Y, Zhang X Z 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 154701 (in Chinese) [卢肖勇, 张小章 2018 *物理学报* **67** 154701]
- [15] Lu X Y, Zhang X Z, Zhang Z Z 2018 *Chin. Phys. B* **27** 124702
- [16] Lu X Y, Chai J J 2019 *Chin. Phys. B* **28** 074702
- [17] Lu X Y 2020 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Tsinghua University) (in Chinese) [卢肖勇 2020 *博士学位论文* (北京: 清华大学)]
- [18] Fan J, Boyd I D, Shelton C 2000 *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** 2937
- [19] Balakrishnan J, Boyd I D, Braun D G 2000 *J. Vac. Sci. Technol. A* **18** 907
- [20] Xie G F, Wang D W, Ying C T 2002 *Atom. Energ. Sci. Tech.* **36** 147 (in Chinese) [谢国锋, 王德武, 应纯同 2002 *原子能科学技术* **36** 147]
- [21] Bird G A 1994 *Molecular Gas Dynamics and the Direct Simulation of Gas Flows* (New York: Oxford University Press) pp218—220
- [22] Demtröder W (translated by Ji Y) 2012 *Laser Spectroscopy* (Vol. 1: Basic Principles) (Beijing: Science Press) pp10—13 (in Chinese) [沃尔夫冈·戴姆特瑞德 著 (姬扬 译) 2012 *激光光谱学* (第 1 卷: 基础理论) (北京: 科学出版社) 第 10—13 页]
- [23] Li Y 2015 *M. S. Dissertation* (Tianjin: Tianjin University) (in Chinese) [李阳 2015 *硕士学位论文* (天津: 天津大学)]
- [24] Shen Q 2003 *Rarefied Gas Dynamics* (Beijing: National Defense Industry Press) pp122—127 (in Chinese) [沈青 2003 *稀薄气体动力学* (北京: 国防工业出版社) 第 122—127 页]
- [25] Wang Q, Li X J, Chen Y, Chen Y 2019 *Chem. React. Eng. Technol.* **35** 129 (in Chinese) [王权, 李小江, 陈勇, 陈英 2019 *化学反应工程与工艺* **35** 129]

Simulation of lutetium metal evaporation with considering atomic metastable state

Lai Gan-Ping¹⁾²⁾ Zhang Xiao-Wei^{2)†}

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

2) (*Science and Technology on Particle Transport and Separation Laboratory, Tianjin 300180, China*)

(Received 14 April 2023; revised manuscript received 20 June 2023)

Abstract

Lutetium-177, one of the current global research hotspots for medical isotopes, can be produced by reactor irradiation of lutetium-176, which can be produced and processed with the assistance of the electron beam physical vapor deposition (EB-PVD). The metal evaporation process is an important part of EB-PVD, which aims to convert solid metal into metal atomic vapor. The distribution of each macroscopic characteristic quantity, such as thermal population distribution, density distribution, velocity distribution, and temperature distribution of metal atomic vapor, will directly affect the utilization of metal vapor atoms, the subsequent deposition process, and coating process. In this paper, two-dimensional model and three-dimensional model of the metal evaporation process are established based on the direct simulation Monte Carlo method, and atomic metastable state is introduced into the collision assumption. The macroscopic characteristic quantities, such as the number density of metal atomic vapor, the motion velocity and the discrete degree of the total motion velocity in the evaporation process with or without considering the lutetium atomic metastable state, are analyzed and compared. The spatial distribution characteristics of each energy level of metal atomic vapor are observed, and the variation characteristics of the macroscopic characteristic quantities in the center with the slit opening size and the evaporation source surface temperature are discussed. The study results show that the number density of metal vapor passing through the beam flow device decreases, the average velocity in the x -direction and z -direction and the discrete degree of the total motion velocity increase, with the atomic metastable state taken into consideration. The beam flow device intensifies the transformation of the atomic energy level of the metal vapor and changes the physical parameters of the metal atomic vapor. At the same time, the slit opening size and the evaporation source surface temperature trigger off the change of the macroscopic characteristic quantity distribution of the metal vapor, including the degree of anomalous protrusion of each macroscopic characteristic quantity above the slit. The results of the three-dimensional simulation based on the two-dimensional model are consistent with the changes in the order of magnitude of data distribution and spatial distribution pattern, which can serve as a reference and guidance for the experimental study of the electron beam metal evaporation process.

Keywords: direct simulation Monte Carlo method, lutetium, atomic metastable state, metal evaporation

PACS: 47.45.-n, 51.10.+y

DOI: 10.7498/aps.72.20230602

† Corresponding author. E-mail: 2809024720@qq.com



考虑原子亚稳态的镧金属蒸发过程模拟研究

赖贻平 张晓卫

Simulation of lutetium metal evaporation with considering atomic metastable state

Lai Gan-Ping Zhang Xiao-Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 184702 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20230602

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230602>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

背景气体对金属原子二维平面蒸发过程的影响

Influence of background gas on two-dimensional metal evaporation

物理学报. 2018, 67(15): 154701 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180066>

热辐射输运问题的高效蒙特卡罗模拟方法

An efficient Monte Carlo simulation method for thermal radiation transport

物理学报. 2020, 69(2): 029501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191315>

稳定的高亮度低速亚稳态氦原子束流

A bright and stable beam of slow metastable helium atoms

物理学报. 2021, 70(13): 133201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201833>

特征 γ 射线谱分析的蒙特卡罗模拟技术

Monte Carlo simulation technology based on characteristic γ -ray spectrum analysis

物理学报. 2020, 69(11): 112801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200279>

基于蒙特卡罗-离散纵标方法的氘氚激光等离子体聚变反应率数值模拟

Numerical simulation of deuterium-tritium fusion reaction rate in laser plasma based on Monte Carlo-discrete ordinate method

物理学报. 2019, 68(21): 215201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190440>

基于蒙特卡罗模拟研究铅钛酸锆材料的中子辐照损伤

Simulation of neutron irradiation damage in lead lanthanum zirconate titanate by Monte Carlo method

物理学报. 2022, 71(7): 076101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212041>