

Исследование коэффициента конденсации атомов свинца с тепловыми энергиями

Н. Н. Антонов и С. Н. Жабин

Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., 13, стр.2, Москва 125412, Россия

E-mail: antonovnickola@gmail.com

Статья поступила в редакцию 23 ноября 2018 г.

Аннотация. В рамках концепции плазмооптической масс-сепарации отработавшего ядерного топлива разделенные химические элементы осаждаются на коллекторы. Данный процесс во многом определяет эффективность сбора материала, следовательно, и всего процесса переработки в целом, поэтому данная часть технологической цепочки требует детального изучения. Для отработки целого ряда этапов плазменной сепарации целесообразно использовать модельные вещества. В качестве элемента, моделирующего динамику и кинетику «тяжелой» компоненты отработавшего ядерного топлива, был выбран свинец. В работе представлены результаты исследования коэффициента конденсации паров свинца с тепловыми энергиями на подложку золотого электрода кварцевого резонатора. Эффективность осаждения при давлении остаточных газов $2 \cdot 10^{-5}$ мбар и температуре внутри испарительной ячейки около 850°C оказалась около 50%. Было показано, что измерительная система позволяет диагностировать массу покрытия свинца толщиной в один монослой (70 нг). <https://doi.org/10.33849/2018107>

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время одной из актуальных задач атомной энергетики является переработка отработавшего ядерного топлива (ОЯТ), необходимая для перехода к замкнутому топливному циклу с целью более полного вовлечения ресурсов топлива реакторов за счет выделения минорных актиноидов для повторного использования рефабрированного топлива. Другими, не менее важными, побудительными мотивами создания и внедрения такой технологии являются требования экологии, направленные на сокращение количества захораниваемых радиоактивных отходов, а также объема перевозок высокоактивных материалов. Следует отметить, что разрабатываемая технология переработки ОЯТ должна удовлетворять требованию нераспространения ядерного оружия, т.е. обязана не допустить возможности выделения плутония, в том числе и путем изменения режимов работы оборудования. Потенциально вышеперечисленным требованиям отвечает обсуждаемая в последнее время плазменная сепарация [1].

Метод плазменной сепарации заключается в том, чтобы сначала перевести твердое вещество (ОЯТ) в плазму, затем в специальной конфигурации электрического и магнитного полей в плазме разделить смесь веществ по группам масс. После разделения низкоэнергетичные ионизированные потоки веществ конденсируются на коллекторы. Процесс осаждения во многом определяет эффективность сбора материала, следовательно, и всего процесса переработки в целом. Поэтому данная часть технологической цепочки требует детального изучения. Для отработки целого ряда этапов плазменной сепарации целесообразно использовать модельные вещества. В качестве элемента, моделирующего динамику и кинетику «тяжелой» компоненты ОЯТ, был выбран свинец. Основная задача проведения экспериментов с осаждением потока атомов свинца состояла в определении эффективности процесса конденсации. При этом под эффективностью η понимается отношение числа атомов ΔN , адсорбированных на участке поверхности площадью ΔS за время Δt , к потоку j_0 ато-

мов, взаимодействующих с поверхностью. Данная задача наиболее близка к задачам, которые возникают в молекулярно-пучковой эпитаксии — технологии, разработанной для выращивания чистых кристаллических структур на подложках [2, 3]. Несмотря на широкое распространение методов молекулярно-пучковой эпитаксии для создания полупроводниковых структур — как в научно-экспериментальной технике, так и в промышленности — нам не удалось найти описание процесса осаждения атомарного потока свинца и данных о его эффективности.

2. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Экспериментальная установка представляет собой вакуумную камеру с давлением остаточных газов на уровне $2 \cdot 10^{-5}$ мбар, внутри которой располагается конструкция с эффузионной ячейкой и пьезорезонансным датчиком, который размещается перпендикулярно направлению распространения формируемого атомарного потока свинца. Разогрев вещества производился с помощью вольфрамовой проволоки диаметром 0,3 мм (ток накала до 7 ампер). Вольфрамовый нагреватель нависался на керамическую трубку с отверстием для термпары. Далее эта конструкция вставлялась в керамический тигель с эффузионным отверстием (диаметром около 1 мм) и фиксировалась между цилиндрами из нержавеющей стали (дополнительными тепловыми экранами) с помощью резьбового соединения. Регулирование мощности нагревателя позволяло устанавливать заданную температуру в ячейке, и соответственно изменять поток модельного вещества. Контроль скорости испарения осуществлялся с помощью термпары К-типа (погрешность измерений в исследуемом диапазоне температур около $0,005 \cdot T$, где T — значение диагностируемой температуры), а именно на основании измеренной температуры выполнялся расчет по формуле Кнудсена:

$$J = \frac{PS}{\sqrt{2\pi\mu RT}} N_A \quad (1)$$

где P — давление паров в эффузионной ячейке [4], S — площадь отверстия, T — температура поверхности расплава, μ — молярная масса, N_A — число Авогадро.

Поток атомов, распространяющихся внутри телесного угла $\Delta\Omega$ под углом θ к нормали к площадке определяется выражением:

$$j = \frac{J}{\pi} \cos(\theta) \Delta\Omega \quad (2)$$

Для регистрации атомарного потока использовался пьезорезонансный датчик ДМ-5 производства компании «ЭТНА». Телесный угол площадки, на которую в работе осуществлялось напыление (диаметр площадки составлял $d = 4$ мм, а сама площадка была удалена от выходного отверстия ячейки на расстояние $L = 100$ мм), составлял величину:

$$\frac{\Delta\Omega_s}{\pi} = \frac{2^2}{100^2} = 4 \cdot 10^{-4} \quad (3)$$

Таким образом была получена зависимость массового потока, взаимодействующего с поверхностью кварцевого датчика от температуры паров в эффузионной ячейке (рисунок 1).

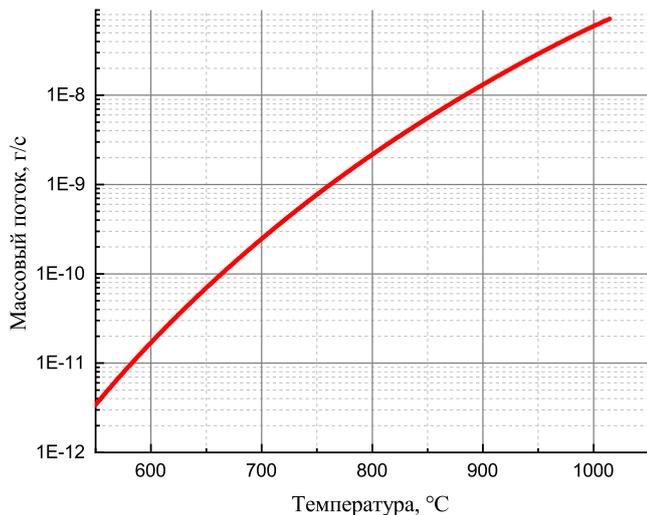


Рисунок 1. Зависимость массового потока, попадающего на площадку детектора, от температуры в эффузионной ячейке.

Стоит отметить, что монослой свинца на площадке, использованной в работе в качестве поверхности напыления (круг диаметром 4 мм), имеет массу около $\Delta m \approx 7 \cdot 10^{-8}$ г. Таким образом, при температуре внутри эффузионной ячейки 850 °C, монослой свинца на поверхности датчика конденсируется в течение 20 с.

Принцип работы кварцевого резонансного датчика основан на зависимости частоты собственных электро-механических (сдвиговых) колебаний системы кварцевой пластины и электродов, включенных в схему резонансного генератора, от массы вещества осаждаемого на электроды [5]. Во время проведения измерения датчик помещался в металлическую капсулу, с отверстием в боковой стенке, расположенным напротив электрода и имеющим размеры такие же, как и у золотого электрода датчика ($d = 4$ мм). Через это отверстие атомарный поток попадал на подложку.

Связь между изменением резонансной частоты Δf и массы Δm вещества, осажденного на электроды, имеет вид:

$$\Delta m = -\Delta f \frac{NS\rho}{Kf_0^2} \quad (4)$$

где f_0 — резонансная частота, которая много больше изменения Δf , ρ — плотность кварца, S — площадь электрода, на который происходит осаждение вещества, K — коэффициент заполнения, учитывающий неравномерность распределения осевшего вещества по площади электрода (для равномерного распределения $K = 1$). В условиях проводимых экспериментов распределение осаждающихся атомов считалось равномерным. Параметр N — частотный коэффициент, зависящий от упругих свойств материала, из которого выполнен датчик. Для кварца $N = 1,77 \cdot 10^7$ Гц · см, $\rho = 2,56$ г/см³. Площадь электрода $S \approx 0,13$ см², рабочая частота $f_0 = 10$ МГц.

Для регистрации частоты колебаний датчика в работе использовался частотомер АСН-8023 с десятью значащими цифрами, что позволило обеспечить регистрацию частоты с точностью до 10^{-3} Гц. В условиях проводимых измерений, изменение частоты Δf на 1 Гц соответствовало изменению массы Δm на $5,7 \cdot 10^{-8}$ г, что, в свою очередь, соответствует осаждению $\approx 2 \cdot 10^{14}$ атомов монослоя ($7 \cdot 10^{-8}$ г) свинца, покрывающего площадь детектора. Стоит отметить, что для датчиков АТ-среза характерна заметная чувствительность к температуре, которая зависит от точного значения угла среза кварцевой пластины. При проведении измерений необходимо учитывать фактор температуры, чтобы четко различать причину изменения частоты колебаний кварцевого резонатора. Для учета влияния потоков тепла (излучения раскаленной эффузионной ячейки), приходящих на датчик, в предварительной серии экспериментов осуществлялась регистрация частотных характеристик без свинца в испарителе. Стоит подчеркнуть, что, для уменьшения температурного влияния эффузионной ячейки, на пути распространения потока паров свинца и теплового излучения размещалась заслонка, которая отводилась во время измерения.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Частотные характеристики датчика, полученные в эксперименте при температуре внутри эффузионной ячейки 846 °C приведены на рисунке 2.

Оценка массы вещества Δm , осажденной на поверхность датчика при температуре внутри эффузионной ячейки 846 °C, по формуле 4 дает значение $4,55 \cdot 10^{-7}$ г ($\Delta f = 8$ Гц). С учетом того, что напыление длилось 180 секунд можно оценить поток массы на поверхность датчика и сравнить его с данными приведенными на рисунке 1. Поток на датчик при температуре 846 °C составляет около $3 \cdot 10^{-9}$ граммов в секунду, что приблизительно в два раза меньше, чем численное значение, которое получено по формуле 4 с учетом геометрии эксперимента. То есть эффективность осаждения составила 50%. Стоит отметить, что температура внутри эффузионной ячейки 846 °C близка к границе применимости формулы Кнудсена. При давлении насыщенных паров,

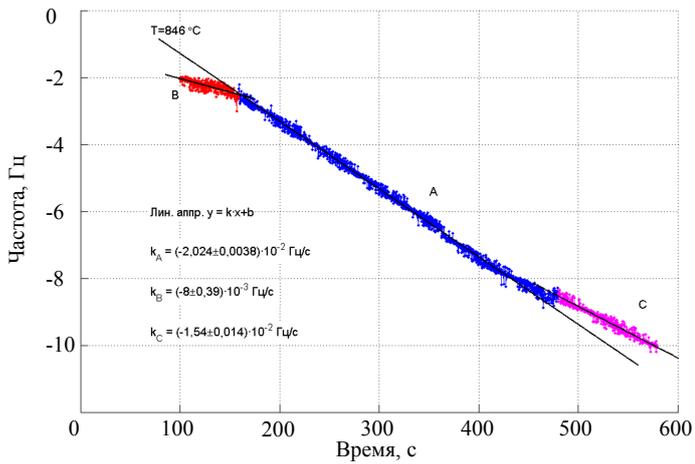


Рисунок 2. Изменение частоты кварцевого резонатора в процессе напыления свинца при температуре 846 °С в эффузионной ячейке. Участок кривой «А» соответствует открытой заслонке, а участки кривой «В» и «С» закрытой.

соответствующем данной температуре, длина свободного пробега частиц становится соизмеримой с размерами отверстия эффузионной ячейки.

4. ВЫВОДЫ

В рамках работы проведено исследование коэффициента конденсации паров свинца с тепловыми энергия-

ми на подложку золотого электрода кварцевого резонатора. Эффективность осаждения в описанных условиях оказалась близка к 50%. Было показано, что данная измерительная система позволяет диагностировать массу покрытия свинца толщиной в один монослой (70 нг). Стоит отметить, что кварцевый резонатор может быть использован также для измерения среднего заряда потоков плазмы слабой интенсивности, то есть может быть использован в качестве конденсационного зонда высокого массового разрешения.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Долголенко Д А и Муромкин Ю А 2017 *УФН* **187** 1071–1096
2. Cho A Y and Arthur J R 1975 *Prog. Solid State Chem* **10** 157–191
3. Frigeri P, Seravalli L, Trevisi G and Franchi S 2011 Molecular beam epitaxy: An overview *Comprehensive Semiconductor Science and Technology* ed Pallab B *et al* (Amsterdam: Elsevier) pp 480–522
4. Григорьева И С и Мейлихова Е З 1991 *Физические величины: Справочник* (Москва: Энергоатомиздат)
5. Малов В В 1989 *Пьезорезонансные датчики* 2-е изд. (Москва: Энергоатомиздат)