

РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ИНТЕНСИВНОСТИ РАСПЫЛЕНИЯ ТОНКИХ УГЛЕРОДНЫХ ПЛЕНОК ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ УРАНА

STUDY RESULTS FOR INTENSITY OF THIN CARBON FILMS SPUTTERING BY URANIUM FISSION FRAGMENTS

Г. В. Влох, С. В. Фролова, В. Ю. Волгутов, В. А. Бродская
G. V. Vlokh, S. V. Frolova, V. Yu. Volgutov, V. A. Brodskaya

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», Саров Нижегородской обл.

Federal Nuclear Center of Russia – All-Russian Research Institute of Experimental Physics

В работе представлены результаты исследований распыления осколками деления (ОД) урана тонких углеродных пленок, изготовленных методом термического вакуумного напыления. Согласно проведенным исследованиям интенсивность распыления углеродных пленок не превосходит ~50 атом/ОД, что говорит о возможности их использования в качестве защитных покрытий урановых слоев.

There are presented in the paper the results of investigating sputtering by uranium fission fragments (FF) of thin carbon films produced by a method of thermal vacuum deposition. In accordance with the investigations carried out the intensity of carbon films sputtering does not exceed ~50 atom/FF what indicates the possibility of their use as protective coating for uranium layers.

Распыление уранового слоя собственными осколками деления (эжекция) на сегодняшний день является основной причиной деградации энерговыделяющих элементов (эвэлов) лазеров с ядерной накачкой (ЛЯН) [1]. Исследования, проведенные во ВНИИЭФ, позволили установить, что распыление уранового слоя (~2,5 мкм) в эвэлах происходит с интенсивностью $K \sim 10^3$ атом/ОД. Нетрудно оценить, что при данном значении K уже при флюенсе тепловых нейтронов $\sim 10^{18}$ см⁻² (~0,05 % выгорания урана) может быть распылено более половины уранового слоя эвэла. Ресурс эвэлов в этом случае определяется уносом массы урана с поверхности эвэла.

Уменьшать интенсивность распыления K (теоретический предел неупругого распыления $K \sim 10$ атом/ОД) возможно двумя способами: 1) изменение дисперсности поверхности уранового слоя; 2) нанесение на урановый слой защитного покрытия.

В настоящей работе приведены результаты расчетных и экспериментальных исследований, касающиеся второго из указанных способов.

Необходимо отметить, что в настоящее время в качестве защитного покрытия в эвэлах используется алюминиевая пленка толщиной ~0,5 мкм. Однако, обладая хорошей адгезией к урану и радиационной стойкостью к n - γ -облучению, алюминиевая плёнка снижает эффективность эвэлов на ~20 %¹. Кроме того, согласно опубликованным данным, защитное алюминиевое покрытие, предохраняя уран от неупругого распыления, может само интенсивно (~10³ атом/ОД) распыляться осколками деления [2].

Руководствуясь вышеизложенным, в ИЯРФ-ВНИИЭФ был проведен поиск материала для защитного покрытия урана от эжекции. На основании разработанной во ВНИИЭФ физической модели эжекции (ФМЭ) и анализа литературных данных был сделан вывод о перспективе использования в качестве эффективного защитного покрытия тонких углеродных пленок, наносимых на поверхность урана [3]. Углеродные пленки имеют сплошную структуру при малой толщине (от 1 нм) [4], [5]. Предварительные исследования показали, что пленки обладают механической прочностью и долговременной стабильностью характеристик. Циклическое воздействие температуры (до +100°C), а также продолжительное хранение (в течение ~1 года) в агрессивной газовой среде не приводит к заметным изменениям их свойств. Преимущественно аморфная структура и слабо выраженные неровности поверхности с характерной высотой от 5 до 10 нм и «диаметром» основания >100 нм позволили предположить отсутствие в них интенсивного неупругого распыления.

¹ Более тонкие (<0,1 мкм) алюминиевые плёнки, как правило, обладают сквозной пористостью.

Результаты теоретических исследований

Согласно ФМЭ при прохождении ОД через кристаллическое зерно на поверхности урана возможны следующие механизмы неупругого распыления [3]:

- распыление атомов урана с поверхности в месте выхода ОД (кулоновский механизм эжекции). Максимальная эжекция ~ 50 атом/ОД;
- отрыв с поверхности целого кристаллического зерна (кластера) урана вследствие процессов, происходящих на внутренней границе зерна при пересечения ее ОД (кластерный механизм). Максимально возможный «радиус» отрывающегося зерна составляет $R_{\text{пред.}} = 10$ нм (при энергии ОД 100 МэВ), максимальная эжекция $\sim 2 \cdot 10^5$ атом/ОД;
- сублимация зерна вследствие объемного разогрева ионной решетки зерна (испарительный механизм эжекции). Предельный «радиус» зерна, которое может быть испарено при прохождении ОД с энергией 100 МэВ, составляет $R_{\text{пред.}} = 8$ нм, максимальная эжекция $\sim 10^5$ атом/ОД.

Общая интенсивность неупругого распыления урана определяется суммой указанных механизмов с соответствующим вкладом каждого.

В рамках ФМЭ количество атомов урана $d^4K(E, r, \Omega, \varepsilon)$, распыленных ОД с энергией от E до $E + dE$ из кластера радиусом от r до $r + dr$ и двигающихся в направлении от Ω до $\Omega + d\Omega$ с энергией от ε до $\varepsilon + d\varepsilon$, рассчитывается следующим образом:

$$d^4K(E, r, \Omega, \varepsilon) = n_{\text{класт}} \cdot S(E, r, \Omega, \varepsilon) \cdot \sigma(r) \cdot \varphi(E) \cdot f(r) \cdot dE \cdot dr \cdot d\Omega \cdot d\varepsilon, \quad (1)$$

где $n_{\text{класт}}$ – плотность поверхностных кластеров; $\sigma(r)$ – максимальная площадь сечения кластера; $\varphi(E)$ – спектр ОД на поверхности урана; $f(r)$ – плотность распределения кластеров по размерам; $S(E, r, \Omega, \varepsilon)$ – дважды дифференциальная плотность эжекции для конкретного механизма распыления. Явный вид функции для разных механизмов распыления приведён в работе [3].

Для определения интенсивности распыления урана в эвэле с защитным покрытием $K_{\text{защ}}$ используется понятие проницаемости защитного покрытия $P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t)$, определяемое как отношение количества атомов урана, прошедших покрытие толщиной t , к количеству атомов, распыленных без покрытия:

$$d^4K_{\text{защ}}(E, r, \Omega, \varepsilon, t) = P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) \cdot d^4K(E, r, \Omega, \varepsilon). \quad (2)$$

Тогда для интенсивности распыления эвэла с защитным покрытием получим выражение:

$$K_{\text{защ}}(t) = n_{\text{класт}} \cdot \int \int \int \int S(E, r, \varepsilon, \Omega) \cdot P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) \cdot \varphi(E) \cdot f(r) \cdot \sigma(r) \cdot dE \cdot dr \cdot d\Omega \cdot d\varepsilon. \quad (3)$$

Предполагая независимость энергетических, пространственных и угловых распределений, получим:

$$K_{\text{защ}}(t) = K \cdot P_{\text{защ}}(t), \quad (4)$$

где $P_{\text{защ}}(t) = \int_{\Omega, \varepsilon} P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) \cdot \Omega(\Omega) \cdot \varepsilon(\varepsilon) \cdot d\Omega \cdot d\varepsilon$ – средняя проницаемость защитного покрытия толщиной t ; $\Omega(\Omega)$, $\varepsilon(\varepsilon)$ – угловое и энергетическое распределения распыленных атомов.

Таким образом, для определения интенсивности распыления эвэла с защитным покрытием необходимо знать функцию $P_{\text{защ}}(t)$. Гипотетический вид зависимости проницаемости покрытия от его толщины показан (для иллюстрации) на рис. 1.

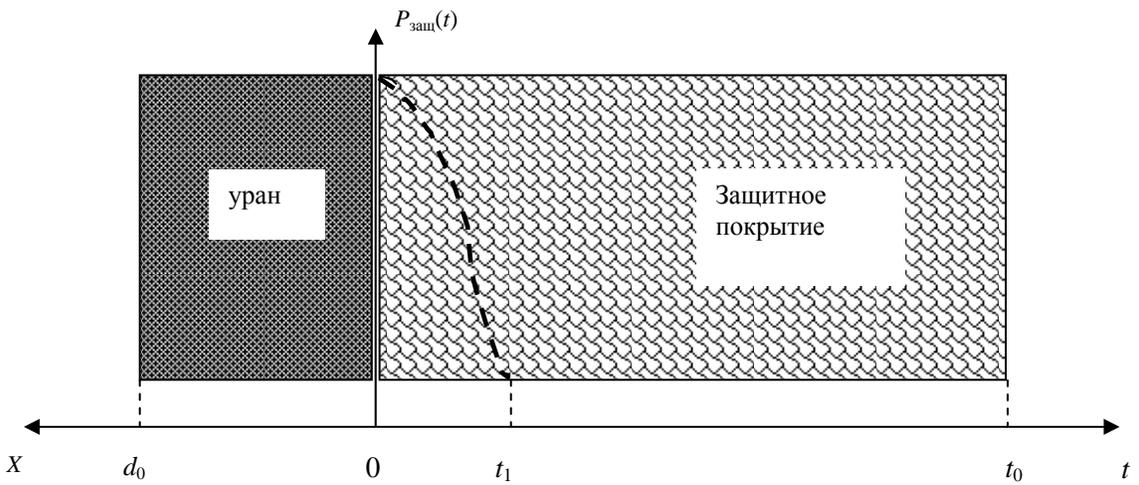


Рис. 1. Геометрическая схема эвэла с защитным покрытием

Защитное покрытие распыляется ОД по мере выгорания урана в эвэле, и его толщина монотонно уменьшается:

$$dt = -\frac{dN_{\text{зашц}}}{n_{\text{зашц}}}, \quad (5)$$

где $N_{\text{зашц}}$ – количество атомов, распыленных с поверхности покрытия, см^{-2} ; $n_{\text{зашц}}$ – концентрация атомов в материале покрытия, см^{-3} .

Распыление связано с флюенсом ОД на свободной поверхности покрытия соотношением:

$$dN_{\text{зашц}} = K_C \cdot dF_{\text{ОД}}, \quad (6)$$

где K_C – коэффициент распыления углеродной пленки;

$$dF_{\text{ОД}} = d_{235}(w) \cdot n_{235}(0) \cdot \left(1 - \frac{d_{235}(w)}{2 \cdot R_{235}}\right) \cdot dw;$$

$d_{235}(w)$ – толщина урана в эвэле при данном выгорании w ; $n_{235}(0)$ – начальная концентрация атомов урана, см^{-3} ; R_{235} – пробег среднего ОД в уране.

Несложно получить выражение для толщины защитного покрытия по мере выгорания урана в эвэле:

$$t(w) \approx t_0 - K_C \cdot \frac{n_{235}(0)}{n_{\text{зашц}}} \cdot d_0 \cdot \left(1 - \frac{d_0}{2 \cdot R_{235}}\right) \cdot w, \quad (7)$$

где d_0 – начальная толщина слоя урана.

На рис. 1 показаны три характерные толщины защитного покрытия: $t = t_0$ – начальная толщина; $t = t_1$ – защитное покрытие становится проницаемым для распыленных атомов урана при $t < t_1$; $t = 0$ – покрытие отсутствует ($P(0) = 1$). В соответствии с этим имеются три характерных значения выгорания урана: $w = 0$ (соответствует t_0); $w > w_1$ (соответствует t_1); $w > w_0$ (соответствует полному распылению покрытия, $t = 0$).

Сделаем оценку для защитного углеродного покрытия толщиной $t_0 \sim 100$ нм.

В эвэлах используются слои урана толщиной $d_0 \sim 2,5$ мкм. Подставляя в формулу (7): $R_{235} \sim 5,5$ мкм, $n_{235}(0) \sim 5 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, $n_{\text{зашц}} \equiv n_C \sim 8 \cdot 10^{22} \text{ см}^{-3}$, получим:

$$\frac{t(w)}{t_0} \approx 1 - 0,5 \cdot K_C \cdot \frac{d_0}{t_0} w, \quad 0 < w < w_0, \quad w_0 = \frac{1}{0,5 \cdot K_C} \cdot \frac{t_0}{d_0} \approx \frac{0,08}{K_C}. \quad (8)$$

Видно, что решающее значение, с точки зрения защитных свойств покрытия, играет величина коэффициента распыления углеродной пленки K_C .

Из сказанного выше ясно, что пока выгорание не превышает значения w_0 , урановый слой будет распыляться незначительно, поскольку проникаемость покрытия для распыленных частиц, в среднем, мала. При $w > w_0$ (покрытие отсутствует) распыление урана идёт интенсивно, $K_{235} \sim 1000$ атом/ОД.

Общая зависимость толщины уранового слоя от выгорания получена из выражения:

$$d(d_{235}) = -K_{235}(w) \cdot d_{235}(w) \cdot \left(1 - \frac{d_{235}(w)}{2 \cdot R_{235}}\right) \cdot dw. \quad (9)$$

где $K_{235}(w) = const = 0$ при $w < w_1$; $K_{235}(w) = const = K_{235}$ при $w > w_0$.

Для интервала $w_1 < w < w_0$ используется линейное приближение:

$$K_{235}(w) = \langle K_{235} \rangle \cdot (w - w_1), \quad w_1 < w < w_0, \quad (10)$$

$$\text{где } \langle K_{235} \rangle \equiv \frac{K_{235}}{(w_0 - w_1)}; \quad w_0 \approx \frac{t_0}{K_C \cdot \frac{n_{235}(0)}{n_{\text{защ}}} \cdot d_0 \cdot \left(1 - \frac{d_0}{2 \cdot R_{235}}\right)}; \quad w_1 \equiv \frac{1}{0,5 \cdot K_C} \cdot \frac{t_0}{d_0} \left(1 - \frac{t_1}{t_0}\right), \quad t_0 > t_1.$$

Интегрируя выражение (9), получим:

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(0)} = 1, \quad w < w_1, \quad (11)$$

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(0)} = \frac{1}{p_0/2 + \left(1 - p_0/2\right) \cdot \exp\left(0,5 \cdot \langle K_{235} \rangle \cdot (w - w_1)^2\right)}, \quad w_1 < w < w_0, \quad (12)$$

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(w_0)} = \frac{1}{p(w_0)/2 + \left(1 - p(w_0)/2\right) \cdot \exp\left(K_{235} \cdot (w - w_0)\right)}, \quad w > w_0, \quad (13)$$

$$\text{где } p_0 \equiv \frac{d_{235}(0)}{R_{235}}; \quad p(w_0) \equiv \frac{d_{235}(w_0)}{R_{235}}.$$

Полученная функция полностью определена при известных значениях величин w_1 , w_0 , $\langle K_{235} \rangle$, которые в свою очередь определяются проникаемостью защитного покрытия $P_{\text{защ}}(t)$ и интенсивностью его распыления. Таким образом, для оценки защитных свойств покрытия необходимо знание интенсивности его распыления и проникаемости $P_{\text{защ}}(t)$.

Функция $P_{\text{защ}}(t)$ определена в рамках ФМЭ при наиболее неблагоприятных условиях для испарительного и кластерного механизмов распыления урана. Кулоновский механизм характеризуется низкой интенсивностью и не принимался во внимание.

Максимально возможная проникаемость $P_{\text{защ}}(t)$ защитного углеродного покрытия в случае испарения зерна урана с поверхности и при отрыве целого кластера урана показана на рис. 2 и 3.

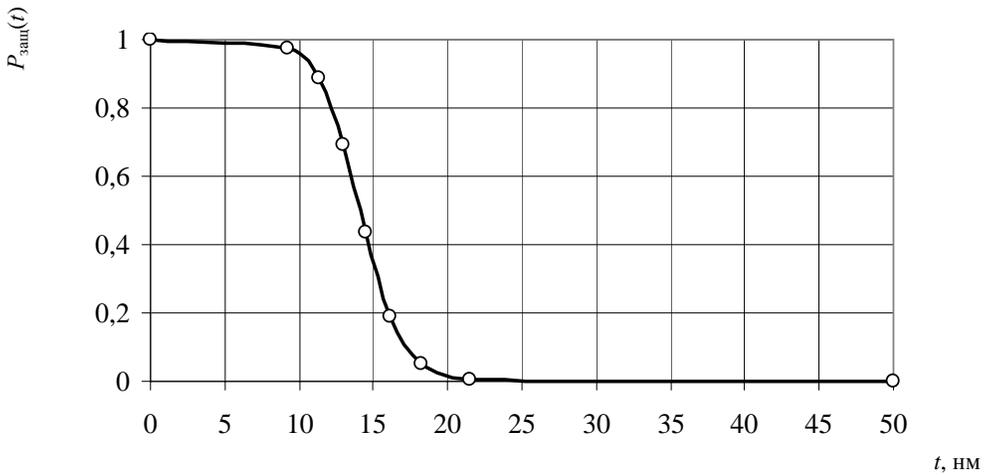


Рис. 2. Проницаемость защитного углеродного покрытия для атомов урана (расчёт, испарительный механизм распыления урана, $E_{\text{Од}} = 100$ МэВ)

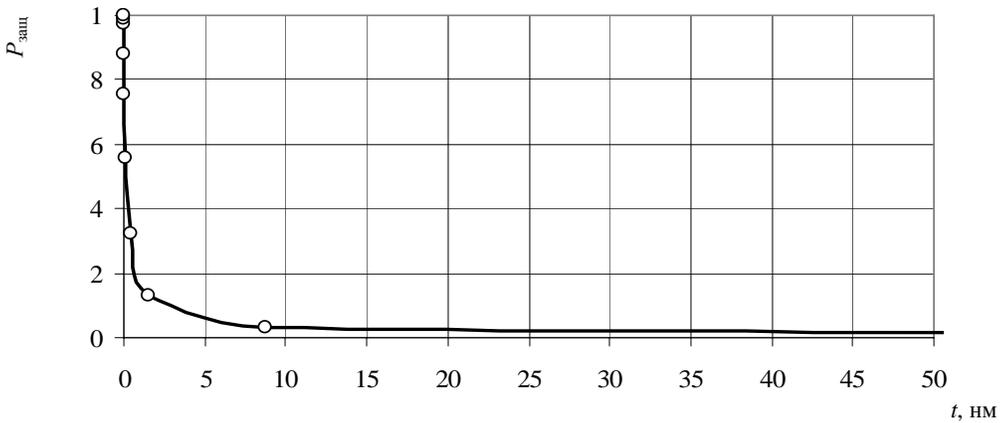


Рис. 3. Проницаемость защитного углеродного покрытия для атомов урана (расчёт, кластерный механизм распыления урана, $E_{\text{Од}} = 100$ МэВ)

Как видно, проницаемость при кластерном механизме значительно ниже, поэтому для оценок ресурса эвлов «снизу» далее используется проницаемость защитного покрытия, полученная для испарительного механизма эжекции. Видно также, что углеродное покрытие становится непроницаемым для распыленных атомов урана при толщине от 20 нм (рис. 2).

Для определения интенсивности распыления защитного углеродного покрытия K_C были проведены экспериментальные исследования.

Результаты экспериментальных исследований

В экспериментах исследовались образцы углеродных плёнок толщиной от 20 до 70 нм, изготовленные методом вакуумного термического напыления [5]. Для исследований было изготовлено 62 образца с площадью поверхности каждого ~ 80 мм².

В качестве источников осколков деления использовались окисные слои урана, изготовленные во ВНИИЭФ в 1989 году методом осаждения из паровой фазы. Слои располагались на расстоянии около 1 мм от поверхности исследуемых образцов.

В качестве источника нейтронов, под действием которых в урановых слоях образуются осколки деления, использовался водный импульсный реактор ВИР-2М [6]. Облучение образцов проводилось в центральном канале реактора в статическом режиме. Флюенс осколков деления на поверхности исследуемых образцов составлял от $\sim 6 \times 10^{11}$ до $\sim 5 \times 10^{12}$ см⁻².

Интенсивность распыления углеродных пленок определялась по результатам измерений характеристик поверхности образцов до и после облучения на атомно-силовом микроскопе (АСМ) следующим образом:

$$K_C = \frac{n_c}{n_{OD}} = \frac{n_0 \cdot V_\Sigma}{N_{OD} \cdot S_{СКАН}}, \quad (14)$$

где n_c – количество вырванных атомов углерода в пределах скана²; n_{OD} – количество ОД на поверхности образца в пределах скана; $n_0 \cong 85$ атом/нм³ – плотность атомов углерода в плёнке; V_Σ – суммарный (реальный) объём вырванных кластеров в пределах скана, нм³; N_{OD} – флюенс осколков деления на поверхности плёнки, ОД/см²; $S_{СКАН}$ – площадь скана, см².

В приведённой формуле (14) величина V_Σ неизвестна, ее нахождение достаточно сложная задача. Для ее решения в работе применены сложнейшие статистические и методологические подходы, на основании которых сделан вывод о том, что кластерное распыление углеродной плёнки ОД имеет место. На рис. 4 представлены типичные АСМ-изображения поверхности углеродной плёнки до и после облучения потоком ОД урана (увеличение $\sim 70\,000$). Значение коэффициента распыления K_c по результатам АСМ-измерений при применении различных подходов составило от ~ 10 до ~ 45 атом/ОД.

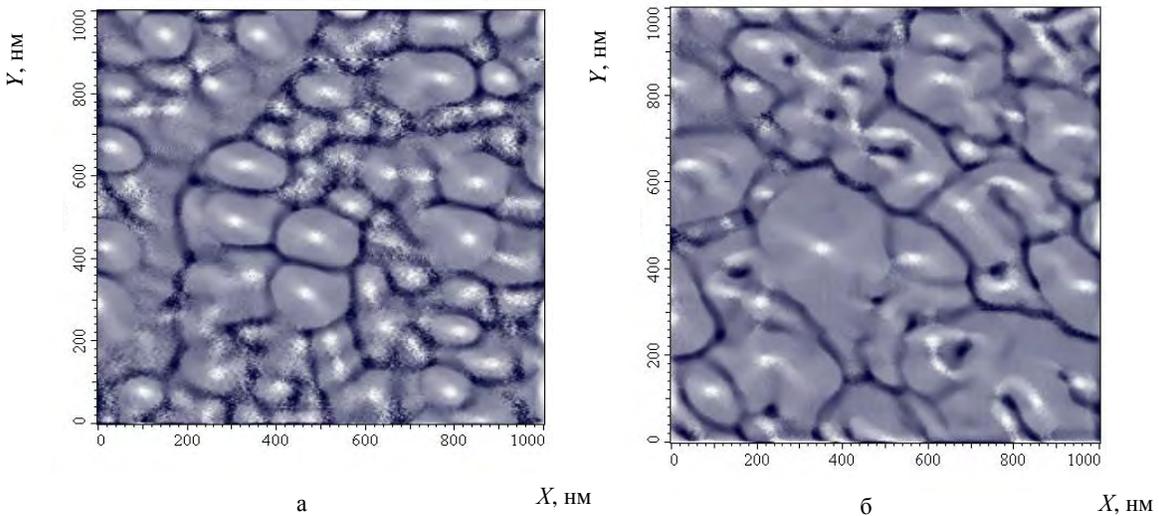


Рис. 4. АСМ-изображения поверхности углеродной плёнки: а, б – образец № 42, соответственно необлученная и облученная ОД поверхности

Необходимо отметить также, что в ходе экспериментальных работ определена форма кластеров углеродной пленки. В отличие от кластеров урана кластеры углеродной пленки представляют собой эллипсоиды вращения с радиусом r и высотой H . Значение $\beta = H/r$ для крупных кластеров близко к 0,2, для мелких кластеров данное отношение ещё меньше. Максимальный размер кластера соответствует $r_{\max} \sim 35$ нм, $H_{\max} \sim 8$ нм.

Расчетный ресурс эвэлов с защитным углеродным покрытием

Результаты проведенных исследований позволили оценить ресурс эвэлов с защитным углеродным покрытием. Оценка ресурса проводилась «снизу» при следующих предположениях: все ОД в урановом слое эвэла рождаются с энергией, близкой к максимальной энергии, $E_{OD} = 100$ МэВ; ОД, попадая в поверхностный кластер защитного углеродного покрытия, проходит через его центр.

² Участок поверхности, анализируемый в микроскопических исследованиях на АСМ.

Под ресурсом эвэла полагаем такое выгорание $w_{0,3}$, при котором распыляется 30 % исходного урана ($\delta = 0,3$). Результаты расчётов представлены на рис. 5. Там же показан критериальный уровень распыления $\delta = 0,3$, и область выгорания урана (штриховка), когда на деградацию эвэлов помимо эжекции начинают влиять радиационные процессы в урановом слое ($w > 1\%$). Очевидно, что снижать влияние эжекции на ресурс эвэлов при выгорании более 1 % не имеет смысла.

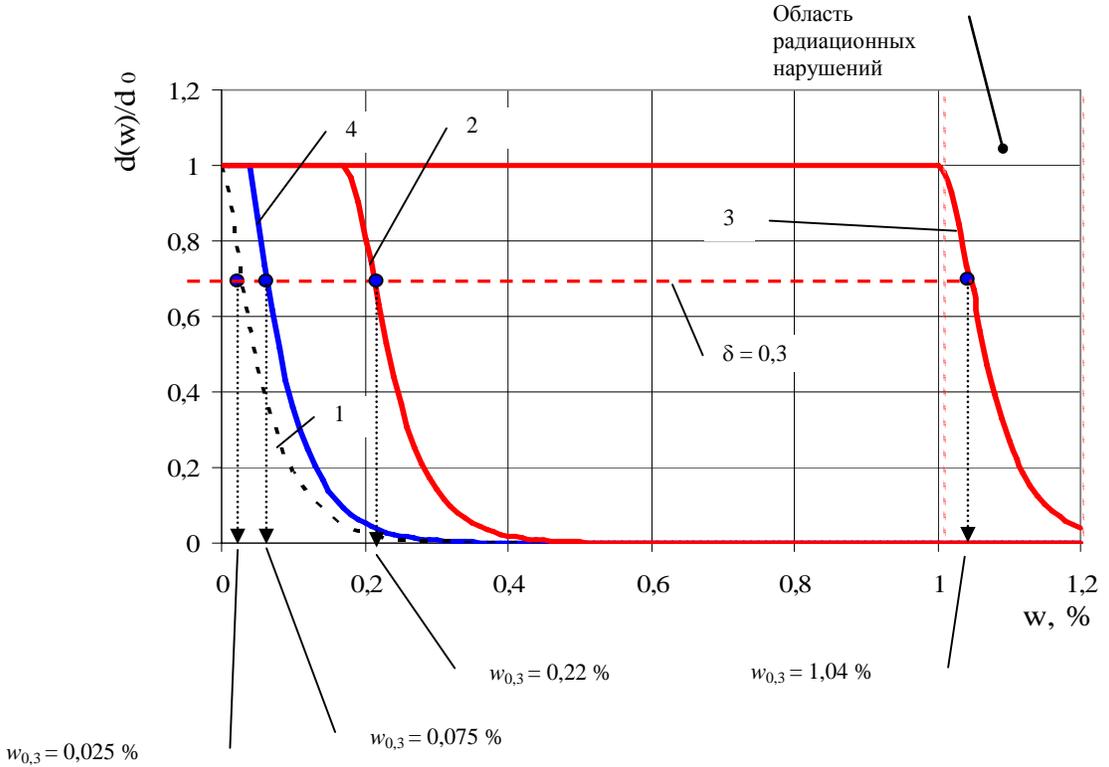


Рис. 5. Изменение толщины уранового слоя при выгорании урана в эвэле: 1 – защитное покрытие отсутствует; 2 – толщина защитного углеродного слоя $t_0 = 0,1$ мкм; 3 – $t_0 = 0,5$ мкм; 4 – алюминиевый защитный слой ($t_0 = 0,5$ мкм)

В табл. 1 для сравнения представлены расчётные значения ресурса $w_{0,3}$ и эффективности $\varepsilon(p, \gamma)$ эвэлов в зависимости от материала защитного покрытия [7].

Таблица 1

Расчётные оценки ресурса и эффективности эвэлов с защитным покрытием

Материал защитного покрытия	$w_{0,3}$, %	$w_{0,3}$, отн.ед.	Эффективность эвэла	Эффективность, отн. ед
Отсутствует	0,025	1	0,192	1
Углерод, $t_0 = 100$ нм	0,22	~9	0,185	0,96
Углерод, $t_0 = 500$ нм	1,04	~42	0,164	0,85
Алюминий, $t_0 = 500$ нм	0,075	~3	0,159	0,83

Как видно, углеродное покрытие обеспечивает многократное увеличение ресурса эвэлов по сравнению с алюминиевым покрытием, используемым в эвэлах в настоящее время.

Таким образом, результаты экспериментальных и теоретических исследований настоящей работы показывают, что углеродные пленки, изготовленные методом термического вакуумного напыления, могут быть использованы в целях повышения ресурса эвэлов ЛЯН.

В ходе работы установлено, что защитное углеродное покрытие толщиной ~ 20 нм практически полностью предотвращает распыление урана. Коэффициент распыления углеродных пленок, измеренный в экспериментах на ИЯР ВИР-2М, не превосходит 50 атом/ОД.

Показано, что углеродное покрытие обеспечивает многократное увеличение ресурса эвэла по сравнению с алюминиевой пленкой. При одинаковой толщине (0,5 мкм) защитное углеродное покрытие увеличивает ресурс эвэла в ~40 раз, алюминиевое покрытие в ~3 раза. Снижение эффективности эвэла в обоих случаях примерно одинаковое.

Список литературы

1. Влох Г. В., Синянский А. А., Филиппов Г. Э., Казаков Л. Л., Косулин Н. С., Череватюк В. Н. Плёночные энерговыделяющие элементы для лазеров с ядерной накачкой // Труды II Международной конференции. Т. 2. Арзамас-16, 1995. С. 47–50.
2. Баранов И. А., Мартыненко Ю. В. и др. Неупругое распыление твердых тел ионами. УФН. 1988. Т. 156, С. 478.
3. Влох Г. В., Фролова С. В. Модельный вид функций, описывающих эжекцию при неупругом распылении урана собственными осколками деления // Труды IV международной конференции «Физика лазеров с ядерной накачкой и импульсные реакторы». Обнинск, 2007. Т. 1. С. 375.
4. Горелик С. С., Расторгуев Л. Н., Скаков Ю. А. Рентгенографический и электроннооптический анализ. М.: Металлургия, 1970. С. 368.
5. Техника электронной микроскопии. Под редакцией Д. Кэя. М.: Мир, 1965. С. 406.
6. Воинов А. М., Колесов В. Ф., Матвеев А. С. и др. Водный импульсный реактор ВИР-2М и его предшественники. // ВАНТ. Сер.: Импульсные реакторы и простые критические сбор-ки, вып. 3, 1990. С. 3–15.
7. Казазян В. Т. и др. Физические основы использования кинетической энергии осколков деления в радиационной химии. Минск: «Наука и техника», 1972. С. 248.