



ПРОЦЕССЫ РАЗДЕЛЕНИЯ ПРИ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОМ ИСПАРЕНИИ СПЛАВОВ И СМЕСЕЙ ВЕЩЕСТВ

А. В. Махоткин, И. С. Малашенко, В. И. Топал

Рассмотрены газодинамические аспекты электронно-лучевого испарения. Обнаружен и исследован эффект пространственного разделения компонентов пара с различной молекулярной массой, суть которого заключается в обогащении конденсата в центре парового потока компонентом с большей молекулярной массой, а на периферии потока — компонентом с меньшей молекулярной массой. Представлены результаты экспериментов по испарению различных сплавов. На основе обнаруженного эффекта предложен способ разделения изотопов.

Gas-dynamic aspects of electron beam evaporation are considered. Effect of space separation of vapor components of a different molecular mass was revealed and investigated, the principle of which consists in condensate enrichment with a component of a large molecular mass in the center of a vapor flow, while at the flow periphery - with a component of a smaller molecular mass. Results of experiments on evaporation of different alloys are presented. A method of isotopes separation has been offered on the basis of the revealed effect.

Ключевые слова: электронно-лучевая технология; интенсивное испарение; динамика разреженных газов; слой Кнудсена; процессы разделения

Введение. Способ получения конденсатов металлов путем термического испарения и физического осаждения пара известен уже более ста лет, начиная с экспериментов Фарадея в 1857 г. [1]. Первоначально для этих целей использовали косвенные способы нагрева (резистивный или нагрев тигля, в котором находится испаряемый материал). Скорости испарения и осаждения при этом были невелики. С середины двадцатого века началось интенсивное внедрение в промышленность процессов электронно-лучевого испарения и осаждения материалов в вакууме, которые благодаря использованию мощных концентрированных источников энергии позволили увеличить скорость испарения металлов до 100 кг/ч, а скорость их осаждения — до 100 мкм/мин [2]. Появилась возможность получать не только тонкие пленки, но и сравнительно толстые (более 1 мм) покрытия, конструкционные материалы и изделия. Диапазон применения электронно-лучевой технологии в современной индустрии достаточно широк — коррозионно- и жаростойкие, а также теплозащитные покрытия на деталях газотурбинных установок и двигателей, полупроводниковые устройства, оптические пленки и др.

Одновременно с развитием техники испарения и конденсации развивались представления о физических механизмах, лежащих в основе этого процесса. При изучении механизма переноса пара от

поверхности испарения к подложке изменялось представление о движении пара (от свободно-молекулярного разлета для небольшой интенсивности процесса испарения [1] до сверхзвуковой струи, распространяющейся в вакууме при мощном электронно-лучевом нагреве поверхности [3, 4]). В настоящей работе рассматриваются процессы разделения в паровом потоке, возникающие при электронно-лучевом испарении сплавов или смесей веществ, содержащих компоненты с различной молекулярной массой. Эти процессы имеют ярко выраженную газодинамическую природу.

Процесс испарения и движения пара от поверхности испарения. Интенсивность испарения, т. е. количество молекул, покидающих нагреваемую поверхность в единицу времени, определяется в первую очередь ее температурой. Повышение температуры поверхности способствует не только увеличению интенсивности испарения, но (при некоторой температуре) и смене механизмов испарения и движения пара от поверхности испарения. В соответствии с этим различают два режима испарения — слабое и интенсивное [5]. Слабым принято называть такое испарение, при котором молекулы пара после того, как покинут поверхность, свободно удаляются от поверхности с приобретенной скоростью, не сталкиваясь между собой, интенсивным — процесс, при котором количество столкновений молекул между собой над поверхностью испарения настолько велико, что влияет как на сам процесс испарения, так и



на движение пара от поверхности. Картина слабого испарения, когда столкновениями молекул в паре над поверхностью испарения можно пренебречь, хорошо изучена. Процесс интенсивного испарения, при котором испарившиеся молекулы испытывают множество столкновений, более сложен.

При интенсивном испарении вблизи границы раздела фаз возникает характерная область протяженностью в несколько длин свободного пробега молекул. Неравновесный слой пара, находящийся в этой области, в молекулярно-кинетической теории называется слоем Кнудсена. В этом тонком слое происходят первичные столкновения молекул, покидающих поверхность, и начинается формирование парового потока. Далее, за слоем Кнудсена, начиная с его внешней границы, расположена газодинамическая область, в которой поток пара движется перпендикулярно поверхности испарения [5, 6].

В результате множества столкновений в слое Кнудсена некоторая часть молекул попадает обратно на поверхность испарения. От количества испарившихся и возвратившихся обратно молекул зависит «чистая» скорость испарения.

Обратный поток при интенсивном испарении в вакуум рассчитали с привлечением методов кинетической теории газов М. Н. Коган и С. И. Анисимов [7, 8]. Он составлял приблизительно 0,2 потока молекул, вылетающих с поверхности испарения, т. е. из 100 испарившихся с поверхности молекул 20 возвращались обратно. Это позволило записать следующую формулу для определения скорости интенсивного испарения:

$$G = 0,8kp \sqrt{\mu/T},$$

где G — скорость испарения (массовый расход с единицы поверхности); k — коэффициент пропорциональности; p — давление насыщенного пара испаряемого вещества при температуре T ; μ — молекулярная масса испаряемого вещества; T — температура поверхности.

Данная формула отличается от известной Герца–Кнудсена наличием коэффициента 0,8, учитывающего обратный поток молекул. С ее помощью можно вычислить температуру поверхности при интенсивном испарении вещества, если известна скорость испарения.

При удалении от поверхности в режиме интенсивного испарения в движении пара происходят следующие изменения. На внешней границе слоя Кнудсена поток пара движется перпендикулярно поверхности с околосвуковой скоростью. Удаляясь от поверхности, пар начинает расширяться в вакуум, что обусловлено его собственной упругостью. Скорость движения пара возрастает, и поток становится сверхзвуковым. При этом расширение пара происходит не только перпендикулярно поверхности, но и в боковых направлениях, в результате чего формируется струя пара. Боковое расширение становится существенным на расстояниях от поверхности испарения, составляющих примерно ее линейный раз-

мер, например в случае электронно-лучевого испарения — диаметр тигля. (При формировании потока в слое Кнудсена бокового движения нет, поскольку его толщина ничтожна по сравнению с размерами тигля).

Распределение плотности потока пара в пространстве при интенсивном испарении отличается от такового при слабом. Для последнего справедлив закон косинуса, согласно которому плотность потока n пара пропорциональна косинусу угла его отклонения от нормали к поверхности испарения φ [2]:

$$n/n_0 = \cos \varphi,$$

где n_0 — плотность потока пара на его оси.

Для процесса интенсивного испарения плотность потока пара обычно описывают формулой

$$n/n_0 = \cos^x \varphi,$$

где x — эмпирический коэффициент, равный 2...6 [2].

Таким образом, поток пара при интенсивном испарении сужается, по сравнению со слабым, и имеет более направленный характер.

Подытоживая основные особенности, отметим, что слабое и интенсивное испарения — процессы, существенно отличающиеся как в приповерхностном слое, так и в области дальнейшего движения пара от поверхности испарения.

Основные характеристики слабого испарения заключаются в низкой температуре поверхности; удалении от поверхности 100% испарившихся молекул без их возврата на поверхность испарения; движении пара в виде свободно-молекулярного разлета; распределении плотности потока пара в пространстве в соответствии с законом косинуса.

Основные характеристики интенсивного испарения состоят в высокой температуре поверхности; возвращении на поверхность 20% испарившихся молекул; движении пара в виде сверхзвуковой струи, расширяющейся в вакууме; сопровождении распределения плотности потока пара сужением потока, по сравнению с косинусным.

Между этими двумя режимами существует процесс, при котором с увеличением температуры поверхности происходит переход к режиму движения пара как сплошной среды и формирование струи пара. При дальнейшем увеличении температуры поверхности испаряемого материала качественных изменений в процессе испарения и характере движения струи пара не происходит. В уже сформировавшемся режиме интенсивного испарения с повышением температуры поверхности скорость испарения возрастает, но коэффициент в формуле Герца–Кнудсена, определяющий «чистую» скорость испарения, остается по-прежнему равным 0,8.

В большинстве современных электронно-лучевых технологических процессов скорости испарения сравнительно высоки, т. е. имеется выраженное интенсивное испарение.

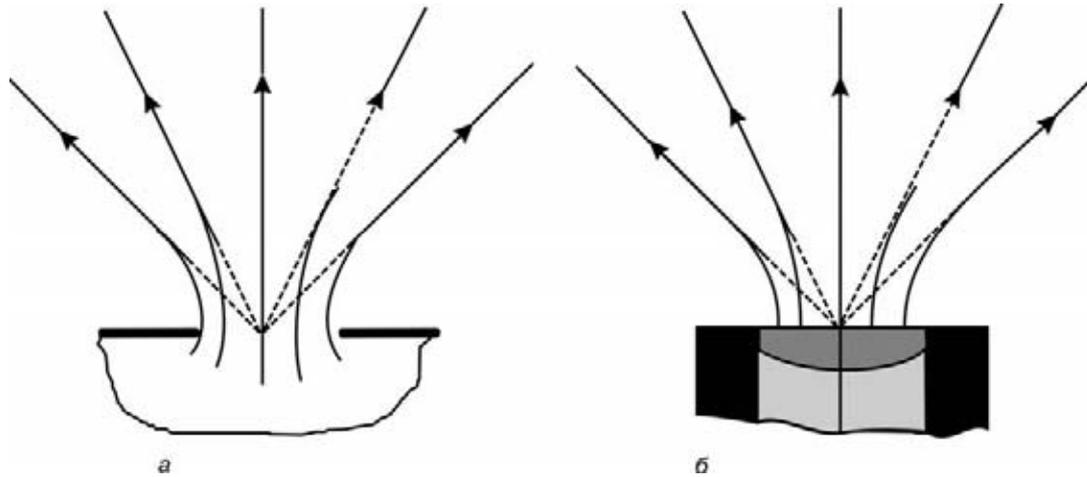


Рис. 1. Форма струи и направление линий тока для потока газа, истекающего из сосуда через отверстие в вакуум (а) и для потока пара при интенсивном электронно-лучевом испарении (б)

Движение пара при интенсивном испарении в вакууме во многом подобно движению газа при истечении в вакуум из сосуда через отверстие в стенке. Сравним картину течения в этих двух случаях.

Двигаясь к отверстию внутри сосуда, газовый поток ускоряется за счет перепада давления и, проходя через плоскость, где лежит отверстие, набирает скорость, равную скорости звука, вектор которой направлен перпендикулярно плоскости отверстия [9,10]. При дальнейшем движении газ расширяется во всех направлениях, и поток становится сверхзвуковым (рис. 1, а). На рисунке показаны линии тока — траектории движения микроскопических объемов газа.

В случае потока пара при интенсивном испарении его формирование происходит в слое Кнудсена, на внешней границе которого скорость достигает значений скорости звука и направлена перпендикулярно плоскости поверхности испарения [11]. При дальнейшем движении поток пара расширяется во всех направлениях и становится сверхзвуковым (рис. 1, б).

Таким образом, направление линий тока и характер течения в этих двух случаях аналогичны,

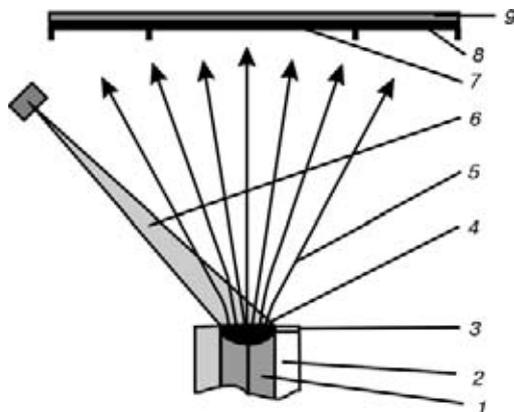


Рис. 2. Разделение компонентов пара при электронно-лучевом испарении: 1 — слиток разделяемой смеси; 2 — тигель; 3 — расплавленная ванна; 4 — поверхность испарения; 5 — линии тока пара; 6 — электронный луч; 7, 8 — зоны конденсата, обогащенные соответственно тяжелым и легким компонентами; 9 — подложка

что позволяет использовать хорошо развитый аппарат газовой динамики при изучении процесса электронно-лучевого испарения. В частности, для оценки углового распределения толщины конденсата при электронно-лучевом испарении могут быть использованы формулы, описывающие плотность потока в струе газа, истекающего из сопла в вакуум [10].

Эффект разделения компонентов с различной молекулярной массой в потоке пара при интенсивном электронно-лучевом испарении. Существует область научного поиска и ряд отраслей индустрии, касающихся процессов разделения смесей, т. е. выделения одного из веществ из их природной смеси или обогащения смеси каким-либо компонентом. Одним из направлений этой деятельности является разделение изотопов, базирующее на различии свойств изотопов и их соединений, а также на разности масс их атомов. Для большинства элементов относительная разность масс изотопов весьма незначительна, и это усложняет задачу. Обычно наиболее производительными являются так называемые обратимые способы разделения (фракционная перегонка или химический обмен) [12]. Исключения составляют трудные для разделения изотопы — элементы с большой молекулярной массой, например изотопы урана U^{235} и U^{238} . В этих случаях экономически целесообразными становятся процессы, базирующиеся на необратимом молекулярном движении. К ним относятся способы разделения изотопов, основанные на эффектах разреженности в газах (газовая диффузия через пористые перегородки, газовое центрифугирование, сопло Беккера, вихревые трубки и др.) [13, 14].

Нами установлено, что при интенсивном электронно-лучевом испарении происходит разделение пара на компоненты с различной молекулярной массой; в центре парового потока конденсат обогащается компонентом с большей молекулярной массой, а на периферии потока — с меньшей (рис. 2). Этот эффект может быть использован, в частности, для разделения изотопов и смесей веществ.

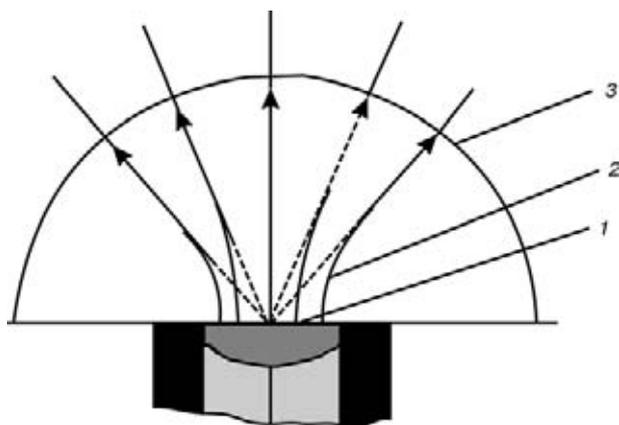


Рис. 3. Расположение подложки в виде дуги полуокружности относительно тигля: 1 — поверхность испарения; 2 — линии тока пара; 3 — подложка

Для изучения обнаруженного эффекта на лабораторной электронно-лучевой установке проведены эксперименты, в которых испаряли сплавы, состоящие из двух или более компонентов. Методика проведения экспериментов заключалась в следующем.

Испаряемый слиток помещали в медный водоохлаждаемый тигель. При помощи электронной пушки с ускоряющим напряжением 20 кВ слиток нагревали до расплавления и достижения необходимой температуры испарения. Ток луча испаряющей пушки составлял для разных сплавов от 1,8 до 3,0 А. Процесс осаждения проводили в вакууме при остаточном давлении $1,3 \cdot 10^{-1} \dots 1,0 \cdot 10^{-2}$ Па. Пар конденсировался на подложку в виде дуги полуокружности радиусом 250 мм с центром, совпадающим с центром тигля (рис. 3), либо на плоскую подложку, находящуюся над тиглем на высоте 300 мм. Температура подложки составляла 400 °С для сплава Al-Sn и 700 °С для всех остальных сплавов. Скорость испарения сплавов из тигля диаметром 70 мм — от 0,5 до 1,2 мм/мин; скорость осаждения парового потока в центре конденсата — от 8 до 30 мкм/мин; толщина конденсата в центре над тиглем — 850 мкм

Таблица 1. Содержание элементов в исходных сплавах

Сплав	Массовая доля элементов, %								
	Ni	Co	Cr	Al	Y	Fe	Ti	V	Zr
Ni-Co-Cr-Al-Y	48	22	18	12	0,2	-	-	-	-
Ni-Cr-Al	74	-	17	9	-	-	-	-	-
Fe-Ni	52	-	-	-	-	48	-	-	-
Cr-Fe	-	-	86	-	-	14	-	-	-
Ti-Al-V	-	-	-	5,3	-	-	90	3,9	< 0,2

в эксперименте со сплавом Ni-Co-Cr-Al-Y и 200... 500 мкм в других экспериментах. Анализировали химический состав поверхности конденсатов в различных точках подложки. Использовали метод рентгеновской спектрофотометрии (XRF-метод).

Для проведения экспериментов применяли бинарные и многокомпонентные сплавы на основе никеля, титана, хрома, алюминия, кремния. Химический состав исходных сплавов приведен в табл. 1.

Методика проведения экспериментов несколько отличалась для разных сплавов:

для испарения исходных сплавов Ni-Co-Cr-Al-Y, Ni-Cr-Al, Fe-Ni, Cr-Fe и Ti-Al-V использовали слитки диаметром 70 мм. Слитки получали с помощью двухстадийного процесса вакуумно-индукционной плавки с последующим электронно-лучевым переплавом;

при испарении сплавов Ni-Co-Cr-Al-Y, Ni-Cr-Al, Fe-Ni, Ti-Al-V применяли способ высокоскоростного испарения, при котором на торце слитка предварительно формируется промежуточная ванна-посредник, куда входят тугоплавкие металлы (ниобий, вольфрам, тантал, гафний), сплавляемые с основным материалом. Сформированная таким образом ванна-посредник используется для уменьшения конвективного движения расплавленного материала, что способствует увеличению температуры

Таблица 2. Содержание элементов в конденсате при экспериментах с плоской подложкой

Сплав	Элементы	Молекулярная масса	Массовая доля элементов, %, при расстоянии точки конденсата от оси тигля, мм							
			0	60	80	100	140	160	200	
Si-Y	Si	28	63,5	-	64,5	-	-	-	79,9	-
	Y	89	36,5	-	34,9	-	-	-	20,1	-
Fe-Ni	Fe	56	47,7	-	-	47,8	-	-	-	48,6
	Ni	59	52,2	-	-	52,1	-	-	-	51,3
Cr-Fe	Cr	52	85,7	85,8	-	-	-	-	86,2	-
	Fe	56	14,2	14,13	-	-	-	-	13,8	-
Ni-Cr-Al	Ni	59	74,2	-	73,7	-	-	-	-	71,8
	Cr	52	16,2	-	16,6	-	-	-	-	17,8
	Al	27	9,4	-	9,6	-	-	-	-	10,2
Ti-Al-V	Ti	48	90,4	-	-	-	-	90,30	-	90,0
	Al	27	5,2	-	-	-	-	5,40	-	5,90
	V	51	3,9	-	-	-	-	3,80	-	3,69
	Zr	91	0,1	-	-	-	-	0,09	-	0,08

Таблица 3. Содержание элементов в конденсате при экспериментах с подложкой в виде дуги полуокружности

Сплав	Элемент	Молекулярная масса	Массовая доля элементов, %, при угле отклонения от нормали к поверхности испарения, проведенной из центра тигля, град								
			0	10	20	30	40	50	60	70	80
Ni-Co-Cr-Al-Y	Ni	59,0	48,30	48,30	46,80	45,70	44,00	41,80	39,60	35,90	33,70
	Co	58,9	23,00	22,50	21,70	21,70	21,30	20,50	19,70	18,20	16,80
	Cr	52,0	16,80	17,00	17,40	19,10	21,30	23,60	25,00	27,00	26,90
	Al	27,0	11,90	12,00	13,30	13,30	13,20	13,90	15,60	18,80	22,50
	Y	89,0	0,18	0,18	0,15	0,14	0,14	0,11	0,09	0,06	0,01
Al-Sn	Al	27,0	84,90	–	–	90,10	–	–	90,80	–	–
	Sn	89,0	15,10	–	–	9,90	–	–	9,20	–	–

поверхности расплава, а также уменьшению разбрызгивания металла [15, 16]. В ходе процесса тугоплавкие добавки с низкой упругостью пара практически не испаряются, а только обеспечивают рост скорости испарения основного металла. Этот прием применяется нами для изменения технологических параметров процесса (увеличения скорости испарения и уменьшения разбрызгивания металла без особого влияния на процесс разделения компонентов);

сплавы Si-Y и Al-Sn предварительно подготавливали путем сплавления компонентов в тигле диаметром 70 мм и глубиной 30 мм с помощью электронно-лучевого нагрева малой мощности;

для всех сплавов эксперимент при одинаковых параметрах процесса проводили дважды, для сплава Ti-6 % Al-4 % V — десять раз.

Результаты химического анализа конденсата, взятого в различных точках подложки, приведены в табл. 2, 3, а также на рис. 4.

Анализ химического состава конденсатов показал, что в центре над тиглем по оси парового потока всегда повышено количество компонентов с большей молекулярной массой, на периферии подложки их меньше, а легких компонентов соответственно больше.

Эффект изменения концентрации элементов вдоль подложки в соответствии с их молекулярными массами зафиксирован в каждом эксперименте. Для экспериментов рассчитывали изменение относительной концентрации $K_{отн}$ элементов вдоль подложки, вычисленное как отношение разности кон-

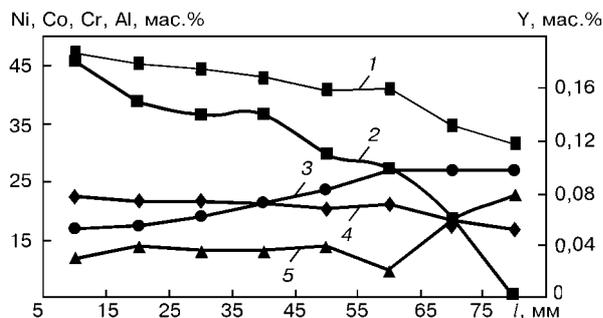


Рис. 4. Изменение химического состава конденсата вдоль подложки для сплава Ni-22 % Co-18 % Cr-12 % Al-0,2 % Y: 1 — Ni (59); 2 — Y (89); 3 — Cr (52); 4 — Co (59); 5 — Al (27); здесь и на рис. 5, 6 в скобках указаны значения молекулярных масс элементов; l — расстояние от центра тигля

центраций элемента в рассматриваемой точке C и в центре конденсата $C_{ц}$ к концентрации этого элемента в центре конденсата $C_{ц}$:

$$K_{отн} = (C - C_{ц}) / C_{ц}$$

Изменения относительной концентрации элементов конденсата для сплава Ti-6 % Al-4 % V приведены на рис. 5. Координата 0 на оси абсцисс соответствует центру тигля. На рисунке приведено изменение средних значений в серии (показано линиями), а также разброс вычисленных значений для отдельных экспериментов этой серии (показано вертикальными полосами). Концентрация на периферии подложки, по сравнению с центром конденсата, растет для элемента с меньшей молекулярной массой (алюминия) и уменьшается для элементов с большей молекулярной массой (титана, ванадия, циркония). Изменение концентрации примеси циркония вдоль поверхности конденсации подчиняется общей закономерности, определяемой молекулярной массой компонентов пара.

Изменение относительной концентрации элементов вдоль подложки для разных сплавов представлено на рис. 6.

Механизм разделения веществ при интенсивном электронно-лучевом испарении можно представить следующим образом. При испарении молекулы материала покидают поверхность и сталкиваются между собой. В результате частых столкновений над поверхностью испаряемого материала образуется

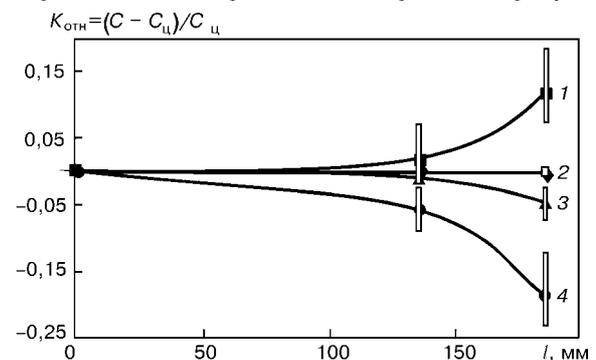


Рис. 5. Изменение относительной концентрации компонентов конденсата вдоль подложки для сплава Ti-6 % Al-4 % V: 1 — Al (27); 2 — Ti (48); 3 — V (51); 4 — Zr (91)

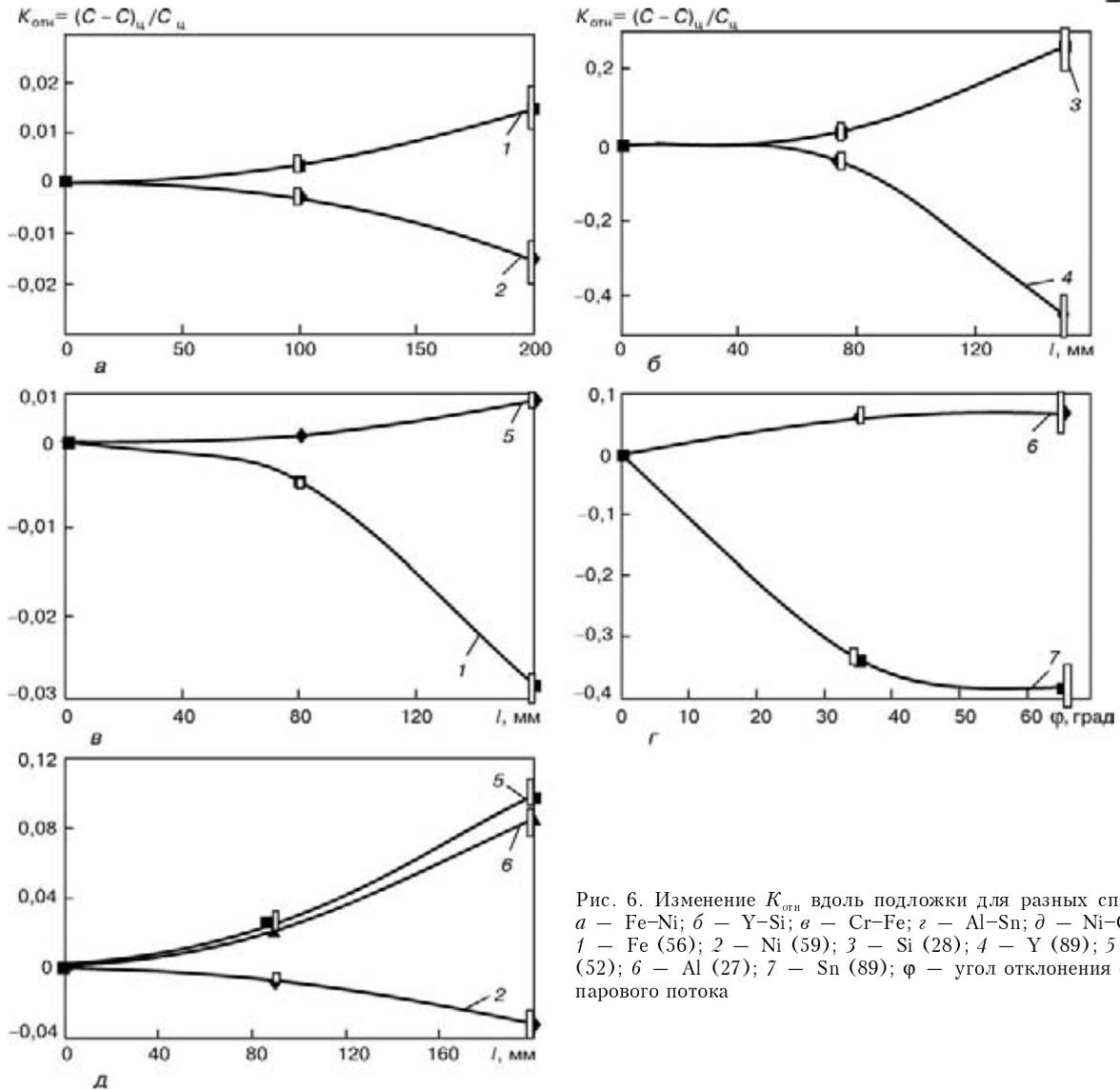


Рис. 6. Изменение $K_{\text{отн}}$ вдоль подложки для разных сплавов: а — Fe-Ni; б — Y-Si; в — Cr-Fe; г — Al-Sn; д — Ni-Cr-Al; 1 — Fe (56); 2 — Ni (59); 3 — Si (28); 4 — Y (89); 5 — Cr (52); 6 — Al (27); 7 — Sn (89); ϕ — угол отклонения от оси парового потока

слой пара с некоторым давлением. Далее пар расширяется в вакуум и за счет этого ускоряется в направлении нормали к поверхности. При этом формируется струя пара, в дальнейшем расширяющаяся не только перпендикулярно к поверхности, но и в разные стороны. Линии тока, по которым движется пар, искривляются, и появляется центробежная сила, действующая на тяжелые молекулы с большей силой, чем на легкие. Это вызывает увеличение скорости диффузии тяжелых молекул к центру струи, что и приводит к разделению компонентов в струе. Такая разновидность диффузии называется бародиффузией, поскольку для ее появления необходим градиент давления, возникающий в данном случае в паре из-за воздействия центробежного ускорения на молекулы пара при их движении вдоль линий тока. Центробежное ускорение можно оценить с учетом скорости движения пара у поверхности испарения (примерно равной скорости звука) и кривизны линий тока (примерно радиус тигля).

Далее пар конденсируется на подложке, расположенной на пути его распространения. В центре подложки формируется конденсат, обогащенный

компонентом с большей молекулярной массой, на краю — компонентом с меньшей молекулярной массой. Время ($1 \cdot 10^{-3} \dots 1 \cdot 10^{-4}$ с), за которое струя пара преодолевает расстояние в 0,3 м от тигля до подложки, оказывается вполне достаточным для того, чтобы в результате диффузии существенно изменилась концентрация элементов на подложке.

Необходимым условием получения эффекта разделения является достижение уровня интенсивности испарения, требуемого для образования струи пара. Если интенсивность испарения меньше, то происходит бесстолкновительное движение испарившихся молекул. При свободно-молекулярном разлете молекулы с разной массой распределяются по направлениям с совершенно одинаковой интенсивностью, и разделения на тяжелые и легкие компоненты не происходит.

Для бинарных смесей описанный выше процесс разделения способствует обогащению центральной части парового потока тяжелым компонентом и обеднению легким. Для многокомпонентных смесей изменение концентрации каждого конкретного компонента будет зависеть от соотношения его молеку-



лярной массы и средней молекулярной массы пара. Центральная часть конденсата обогатится компонентами, имеющими молекулярную массу больше средней, и обеднится компонентами с молекулярной массой меньше средней. Именно такой характер взаимосвязи изменения концентраций и молекулярных масс элементов зафиксирован в экспериментах, проведенных с многокомпонентными сплавами. Например, для сплава Ni–22 % Co–18 % Cr–12 % Al–0,2 Y % (рис. 4, а) в центре конденсата обнаружено увеличение содержания тяжелого компонента (иттрия) и уменьшение содержания легкого компонента (алюминия). Для сплава Ti–6 % Al–4 % V (рис. 5) прирост концентрации по сравнению с центром конденсата положителен для элементов, у которых молекулярная масса меньше средней молекулярной массы пара (алюминий, $\mu = 27$), и отрицателен для элементов с молекулярной массой больше средней (титан, $\mu = 47,9$; ванадий, $\mu = 51$; цирконий, $\mu = 91,2$). Характерно то, что степень изменения относительной концентрации элемента тем выше, чем больше разность молекулярной массы этого элемента и средней молекулярной массы пара. Для сплава Ti–6 % Al–4 % V она равна 45,8... 46,5. Средняя молекулярная масса сплава может быть рассчитана по формуле

$$\mu_{\text{ср}} = n_{\text{Ti}} \mu_{\text{Ti}} + n_{\text{Al}} \mu_{\text{Al}} + n_{\text{V}} \mu_{\text{V}},$$

где $\mu_{\text{ср}}$ — средняя молекулярная масса; μ_{Ti} , μ_{Al} , μ_{V} — молекулярные массы соответственно титана, алюминия, ванадия; n_{Ti} , n_{Al} , n_{V} — молярные концентрации в сплаве соответственно титана, алюминия, ванадия.

В эксперименте со сплавом Cr–Fe) испарение происходило не с жидкой, а с твердой поверхности (путем сублимации). На основе полученных результатов сделан вывод о том, что разделение путем сублимации также возможно, если давление паров компонентов разделяемой смеси при достигнутой температуре поверхности достаточно для поддержания интенсивного испарения и образования струи пара.

Рассматриваемое разделение компонентов по молекулярным массам не является единственной причиной возникновения неоднородности химического состава конденсата вдоль подложки при интенсивном электронно-лучевом испарении. На однородность распределения химического состава конденсата воздействуют многие факторы (неравномерность химического состава поверхности испарения или неполная конденсация, и/или реиспарение одного из компонентов пара на подложке, что, предположительно, является причиной часто фиксируемого для сплавов типа Ni–(Co)–Cr–Al–Y уменьшения содержания хрома в центре конденсата [17]). Однако ни один из них не может объяснить корреляцию между изменением химического состава и молекулярной массой компонентов пара.

Зафиксированный эффект разделения является негативным при нанесении многокомпонентных покрытий на изделия с большими размерами, пос-

кольку следствием его является неоднородность химического состава конденсата вдоль поверхности изделия.

Разделение пара на компоненты с различной молекулярной массой при интенсивном электронно-лучевом испарении может быть использовано в качестве основы способа разделения изотопов, состоящего из следующих этапов:

испарение разделяемого вещества в вакууме с интенсивностью, достаточной для образования струи пара;

осаждение пара на подложке и получение в ее центральной части конденсата, обогащенного тяжелым изотопом, а на периферии — легким изотопом.

Разделение изотопов с помощью рассмотренного способа имеет следующие преимущества. Все способы, основанные на эффектах разреженности в газах, включают преобразование разделяемой смеси в газообразное состояние перед процессом разделения и обратное преобразование после него. При разделении изотопов и смесей веществ путем интенсивного электронно-лучевого испарения необходимость в проведении подобных химических операций отпадает. Кроме того, способ разделения путем непосредственного испарения применим практически к любым элементам, независимо от того, имеют ли они подходящие газообразные соединения. При прочих равных условиях эффективность разделения изотопов чистого вещества больше, чем его газообразного соединения и зависит от относительной разности масс разделяемых молекул, равной отношению разности масс молекул разных изотопов к абсолютной массе молекулы. Преобразование изотопной смеси в газообразное состояние уменьшает относительную разность масс молекул, содержащих изотопы, и затрудняет разделение.

У предлагаемого способа разделения изотопов и смесей веществ при интенсивном испарении существует газодинамическая аналогия — разделение смеси газов или изотопов в сверхзвуковой струе, истекающей в пространство с пониженным давлением [18, 19]. В соответствии с этим способом, газовая смесь истекает через звуковое или сверхзвуковое сопло из сосуда в пространство с пониженным давлением и под воздействием перепада давлений приобретает сверхзвуковую скорость. Далее газовый поток механически, с помощью диафрагмы или экрана, разделяется на две части — центральную и периферийную. При таком истечении из сопла ядро газовой струи обогащается компонентом с большей молекулярной массой, а периферийная часть струи — с меньшей.

Для получения разделения в газовой струе необходимо, чтобы степень разрежения газа находилась в пределах определенного диапазона (число Кнудсена, определяющее этот диапазон, должно составить $5 \cdot 10^{-3} \dots 1 \cdot 10^{-1}$) [14]. Соответственно, физическая возможность существования эффекта разделения при интенсивном электронно-лучевом испарении появляется благодаря тому, что степень



разрежения пара в этом процессе попадает в диапазон разреженности, необходимый для разделения в струе газа.

Существование подобных эффектов разделения в двух внешне разных процессах (электронно-лучевое испарение и истечение струи газа в пространство с пониженным давлением) демонстрирует единую природу механизмов, лежащих в основе этих процессов.

Факт возникновения неравномерности химического состава конденсата вдоль поверхности осаждения при интенсивном испарении отмечался в работе [20], но причина неравномерности не была установлена, как и механизм ее возникновения. Совершенно очевидно, что причина обнаруженной ранее неравномерности химического состава конденсата могла быть определена, исходя из подобия процессов испарения и истечения газа в вакуум.

Использование эффектов и зависимостей более развитого аппарата газовой динамики представляет дополнительные возможности в исследовании электронно-лучевого испарения и процессов разделения. Например, эффективность разделения изотопов, происходящего в струе газа или в разделяющем сопле, резко повышается, если разделяемый газ разбавить вспомогательным газом-носителем с малой молекулярной массой (обычно водородом или гелием) [21]. Это является результатом того, что поток более легкого газа имеет более высокую скорость истечения из сопла.

Можно предположить, что в случае электронно-лучевого испарения предварительное добавление к разделяемой смеси (сплаву) избытка вспомогательного вещества с меньшей молекулярной массой также приведет к увеличению коэффициента разделения. После разделения вспомогательное вещество должно быть удалено из состава конденсата физическим или химическим способом. Очевидно, что при электронно-лучевом испарении могут быть реализованы и другие способы разделения, известные в динамике разреженных газов (разделение изотопов с помощью зонда или пересекающихся струй) [14].

Выводы

1. Рассмотрены некоторые газодинамические аспекты интенсивного электронно-лучевого испарения. Обнаружен и исследован эффект разделения компонентов пара с различной молекулярной массой, возникающий при интенсивном электронно-лучевом испарении. На основе этого эффекта предложен способ разделения изотопов.

2. Изучение процессов испарения и конденсации ограничилось этапом переноса пара от поверхности испарения к подложке. Газодинамические аспекты процесса конденсации на подложке в работе не за-

тронуты, хотя они оказывают существенное влияние на свойства конденсатов.

3. Исследование газодинамических аспектов процесса интенсивного испарения в электронно-лучевой технологии перспективно для управления движением потока пара и целенаправленного воздействия на свойства вакуумных конденсатов.

1. *Технология тонких пленок: Справочник* / Под ред. Л. Майсселла, Р. Глэнга. В 2 т. — М.: Сов. радио, 1977. — Т. 1. — 664 с.
2. Шиллер Э., Гайзиг У. *Электронно-лучевая технология*. — М.: Энергия, 1980. — 528 с.
3. Preuss D. R., Pace S. A. The supersonic expansion of pure copper vapor // *J. chem. phys.* — 1979. — **71**, № 9. — P. 3553–3560.
4. Zhou X. W., Johnson R. A. A molecular dynamics study of nickel vapor deposition // *Acta mater.* — 1997. — **45**, № 4. — P. 1513–1524.
5. Лабунцов Д. А., Крюков А. П. Процессы интенсивного испарения // *Теплоэнергетика*. — 1977. — № 4. — С. 8–11.
6. Анисимов С. И. Действие излучения большой мощности на металлы. — М.: Наука, 1970. — 272 с.
7. Анисимов С. И. Испарение металла под действием лазерного облучения // *Журн. эксперимент. техн. физики*. — 1968. — № 54. — С. 339–342.
8. Коган М. Н., Макашев Н. К. О роли слоя Кнудсена в теории гетерогенных реакций и в течениях с реакциями на поверхности // *Изв. АН СССР. Механика жидкости и газа*. — 1971. — № 6. — С. 3–11.
9. Коган М. Н. Динамика разреженного газа. — М.: Наука, 1967. — 192 с.
10. Ребров А. К. Динамика расширения газа в вакуум // *Вакуумные технологии и оборудование: Сб. докл. 4-го Междунар. симп. (Харьков, 23–27 апр. 2001 г.)*. — Харьков, 2001. — С. 6–15.
11. Анисимов С. И., Рахматуллина А. Х. Динамика расширения пара при испарении в вакуум // *Журн. эксперимент. техн. физики*. — 1973. — **64**, № 3. — С. 869–876.
12. Шемя М. Разделение изотопов. — М.: Атомиздат, 1980. — 169 с.
13. *Report on uranium isotope separation review* / Benedict M., Berman A., Biglisen J. et al. — Oak Ridge, 1972. — 10 p.
14. Муц Е., Гамель Б. Эффекты разреженности в газах и разделение изотопов // *Динамика разреженных газов* / Под ред. В. П. Шидловского — М.: Мир, 1976. — 336 с.
15. *Pat. 5,474,809 USA, ICl⁶ B05D 3/06, C23C 16/00. Evaporation method* / D. W. Skelly, M. R. Jackson — Publ. 12.12.1995.
16. *Pat. 21807 Украина, ICl⁶ C23C14/00. Способ высокоскоростного испарения металлов и сплавов с использованием ванны-посредника* / Б. А. Мовчан, В. И. Топал, А. В. Корж. — Оpubл. 15.09.2001; Бюл. № 15.
17. *Жаропрочность литейных никелевых сплавов и защита их от окисления* / Б. Е. Патон, Г. Б. Строганов, С. Т. Кишкин и др. — Киев: Наук. думка, 1987. — 256 с.
18. *Pat. 2,607,439 USA, ICl² B01D. Separation of gases from mixtures* / S. P. Dickens, C. A. Coghlan — Publ. 19.08.1952.
19. Боровков И. С., Санкович В. М. Сепарация бинарной газовой смеси в свободной струе, истекающей в вакуум // *Ученые зап. ЦАГИ*. — 1970. — **1**, № 3. — С. 109–113.
20. *Physical vapor deposition*. — Berkeley, 1976. — 190 p.
21. Виллани С. Обогащение урана. — М.: Металлургия, 1983. — 354 с.

Ин-т электросварки им. Е. О. Патона НАН Украины, Киев

Поступила 02.06.2005