

05;10

Исследование распределения по размеру капель в испаренном под действием сильноточного электронного пучка металле

© П.Н. Майер, А.Е. Майер

Челябинский государственный университет
E-mail: polina.nik@mail.ru

Поступило в Редакцию 27 декабря 2011 г.

Рассмотрена абляция вещества облучаемой мишени посредством фазовых переходов жидкость–пар. Записаны кинетические уравнения для образования и роста пузырьков пара в расплаве металла. Исследован состав продуктов абляции медной мишени при воздействии сильноточных электронных пучков. Получено распределение капель конденсированной фазы по размерам, которое далее может использоваться для решения задачи конденсации нанопорошков. Показано, что размеры капель конденсированной фазы в аблированном веществе определяются кинетикой процесса испарения, а не исходной структурой материала мишени. Размеры образующихся капель зависят от скорости ввода энергии пучка и при исследованных режимах облучения находятся в диапазоне от нескольких десятков до нескольких сотен нанометров.

В твердом теле, нагреваемом пучком быстрых электронов, может происходить плавление и абляция вещества посредством фазовых переходов жидкость–пар в жидкой фазе. Абляция материала мишени сильноточными электронными пучками и последующая конденсация образовавшегося пара является одним из методов получения порошков ультрадисперсных частиц металлов [1]. Аблированное вещество в большинстве случаев наряду с парами металлов содержит капли конденсированной фазы (жидкого металла). Такие жидкие включения могут существенно влиять на процесс последующей конденсации и на итоговое распределение частиц порошка по размерам.

Конденсация наночастиц из продуктов абляции при электронном облучении численно исследовалась в [2]. В этой работе начальный размер капель в случае неполного испарения связывался с размером зерен в

веществе мишени по аналогии с [3], где рассматривался электровзрыв проводников. В [3] проводился анализ экспериментов [4], в которых электровзрыву подвергались специально подготовленные проволоочки с нанокристаллической структурой. В то же время при получении нанопорошков методами электронно-лучевого испарения исходная мишень обычно имеет крупнозернистую структуру, так что размер кристаллитов (десятки–сотни микрометров) сопоставим или больше, чем толщина зоны энерговыделения. Поэтому сложно предположить, что испарение материала мишени происходило только по границам зерен, как полагалось в [2]. В [2] рассматривалось также испарение электронным пучком вещества с поверхности расплава, при этом размер оставшихся в продуктах абляции конденсированных частиц определялся аналогично случаю воздействия на твердый металл. Таким образом, можно заключить, что размер неиспарившихся конденсированных капель в работе [2] выступал в качестве свободного параметра модели. В данной работе проведено численное исследование образования плазменного факела с учетом кинетики фазовых переходов. Определены структура образовавшейся двухфазной среды, распределение частиц конденсированной фазы по размерам. Эта информация необходима для построения полной последовательной модели конденсации нанопорошков.

По аналогии с [5,6], рассмотрим пузырек паров металла, находящийся в жидком металле. Если химический потенциал пара χ^V меньше, чем химический потенциал жидкости χ^L , то атомы металла имеют тенденцию переходить из окружающей жидкости внутрь пузырька. Этому процессу противодействует поверхностное натяжение. Работа образования кластера новой фазы (пузырька) из g атомов исходной фазы (жидкого металла) может быть записана как [7–9]:

$$W = -(\chi^L - \chi^V)(g - 1) + 2\pi R_1^2 \sigma (g^{2/3} - 1), \quad (1)$$

где σ — поверхностное натяжение, $R_1 = [(3m_1)/(4\pi\rho^V)]^{1/3}$, m_1 — масса атома, ρ^V — плотность пара. Приведенное в (1) выражение для работы обеспечивает выполнение необходимого условия $W = 0$ при $g = 1$ [8,9]. Если W уменьшается при присоединении дополнительных атомов, то рост пузырька является энергетически выгодным. Данное условие определяет критическое количество атомов:

$$g_c = \left(\frac{2\pi R_1^2 \sigma}{\chi^L - \chi^V} \right)^3. \quad (2)$$

Если $g \geq g_c$, то пузырек пара будет расти, а если $g < g_c$, то он будет неустойчив и исчезнет.

Предположим, что все пузырьки возникают из однородной жидкости за счет тепловых флуктуаций. Вероятность такой флуктуации равна:

$$p = \exp\left(-\frac{W}{kT^L}\right), \quad (3)$$

где T^L — температура жидкости. Образование пузырьков с минимальным (критическим) размером наиболее вероятно. Поэтому будем предполагать, что все образующиеся пузырьки имеют одинаковый размер g_c и работа W в соотношении (3) соответствует этому числу атомов. Количество возможных очагов образования пузырьков в единице объема жидкости можно оценить как $\rho^L/(m_1 g_c)$, частоту флуктуаций как R/c_s , где ρ^L — плотность жидкости, $R = R_1 g_c^{1/3}$ — радиус пузырька, c_s — скорость звука в жидкости. В результате получаем следующее уравнение для числа пузырьков в единице объема жидкой фазы:

$$\frac{dn}{dt} = \frac{\rho^L R_1}{c_s m_1 g_c^{2/3}} \exp\left(-\frac{W}{kT^L}\right). \quad (4)$$

Рост уже существующего пузырька будет определять следующая пара процессов: переход атомов из жидкости в пар (прямая реакция) и переход атомов из пара в жидкость (обратная реакция). Скорость обратной реакции определяется частотой столкновений атомов пара с границами пузырька. Полное число столкновений в расчете на один пузырек в единицу времени может быть оценено как $g(2R/c_s)$. В равновесии, когда скорости прямых и обратных реакций равны друг другу, распределение пузырьков по размеру должно определяться распределением Больцмана. Это позволяет найти скорость прямой реакции. Таким образом, было получено следующее уравнение, описывающее рост пузырька:

$$\frac{dg}{dt} = A g \frac{2R}{c_s} \left[\exp\left(-\frac{\partial W}{\partial g} \frac{1}{kT^L}\right) - 1 \right], \quad (5)$$

где A — коэффициент аккомодации (вероятность захвата атома пара жидкой фазой при столкновении с границей пузырька).

Использовалось приближение, что все пузырьки в физически малом объеме вещества имеют одинаковые размеры. Тогда можно записать следующее уравнение для массы пара (на единицу объема среды):

$$\frac{dm^V}{dt} = m_1 g \frac{dn}{dt} + m_1 n \frac{dg}{dt}. \quad (6)$$

Расплав металла с пузырьками пара рассматривался как двухфазная гетерогенная среда [10]. Когда пузырьки в данном физически малом элементе объема среды достигают достаточных размеров, они могут сливаться, образуя односвязную область. Далее паровая фаза должна рассматриваться как несущая среда (матрица). Жидкость при этом, наоборот, дробится на капли, превращаясь в дисперсную фазу (включения). Эти капли становятся далее центрами конденсации в расширяющемся и остывающем паре. Количество и размер жидких капель определяются количеством и размером пузырьков в момент их объединения.

Проблема объединения пузырьков и образования при этом жидких капель относится к классу задач перколяции. Рассмотрим ее в простейшем случае, когда центры всех пузырьков находятся на одинаковых расстояниях друг от друга. Пузырьки соединятся друг с другом, когда их диаметры $2R$ достигнут величины, равной расстоянию между центрами пузырьков. Один пузырек занимает объем $4\pi R^3/3$. Объем жидкости в расчете на один пузырек в момент их слияния равен $(8 - 4\pi/3)R^3$. Предположим, что число образовавшихся капель равно числу объединившихся пузырьков, тогда величина $(8 - 4\pi/3)R^3$ есть объем одной капли. После дробления жидкой фазы капли примут сферическую форму под действием поверхностного натяжения. Радиус образовавшейся жидкой капли может быть оценен как $R_L = (6/\pi - 1)^{1/3} R \approx R$. Таким образом, размер пузырьков пара в момент их объединения определяет радиус капель жидкости; слияние пузырьков происходит, когда их объемная доля достигает величины $\alpha^V \approx 0.5$. В ходе дробления жидкой фазы может образовываться большое количество более мелких капель, мы будем пренебрегать ими.

Последующая конденсация паров металла на каплях описывается уравнениями, приведенными в [2,6]. Здесь мы пренебрегали движением капель относительно пара, рассматривая пар с каплями как односкоростную гетерогенную среду. Однако, в отличие от случая пузырьков в жидкости, движение капель относительно пара может

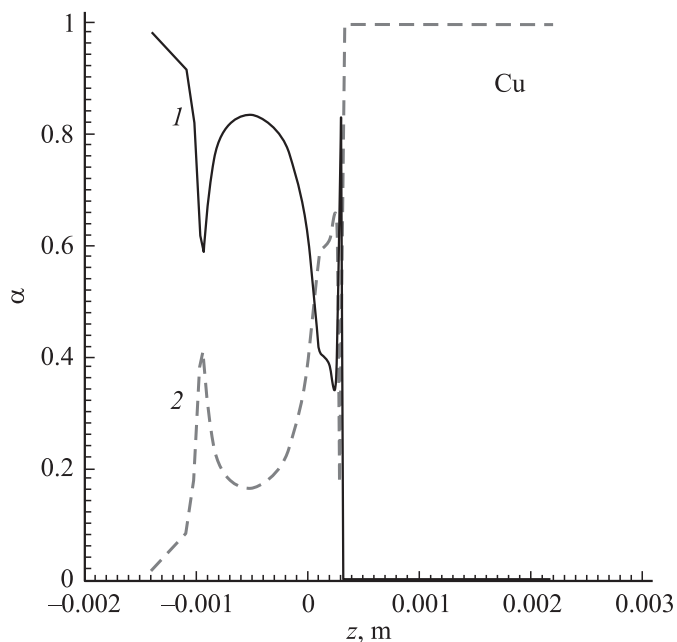


Рис. 1. Объемные доли пара (1) и конденсированной фазы (2) в момент времени 500 ns. Облучение медной мишени электронным пучком: энергия электронов 1 MeV, плотность тока 30 kA/cm^2 , длительность импульса 50 ns.

быть существенным [2], поэтому односкоростное приближение для данной стадии процесса абляции–конденсации является грубым. При моделировании для минимизации ошибок, связанных с односкоростным приближением, мы рассматривали лишь ограниченные времена после объединения пузырьков пара.

Уравнения механики сплошной среды решались методом [11], кинетическое уравнение для быстрых электронов пучка решалось методом [12]. Для описания термодинамического состояния конденсированного металла и его паров использовалось широкодиапазонное уравнение состояния [13], учитывающее метастабильные состояния перегретой жидкости и пересыщенного пара. По приведенным в [13] зависимостям энергии и давления от плотности и температуры восстанавливалось

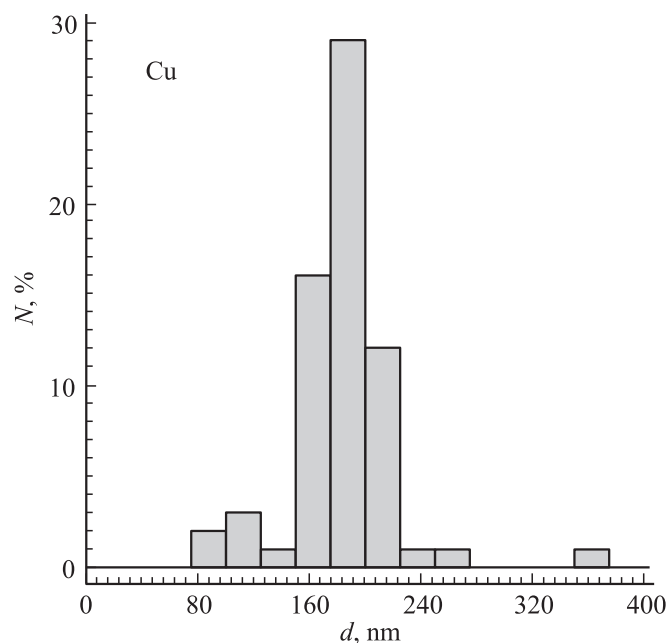


Рис. 2. Гистограмма распределения по размерам жидких капель в продуктах абляции (доля по числу частиц). Условия облучения мишени те же, что на рис. 1. Момент времени 500 ns.

значение химического потенциала. Уравнения (4)–(6) для кинетики испарения решались явным методом Эйлера с переменным временным шагом, который выбирался из условия малости изменения массы и объема паровой фазы.

Как следует из рис. 1, поверхностный слой с исходной толщиной $\sim 300 \mu\text{m}$ частично испаряется. На момент времени 500 ns после начала облучения условие дробления жидкой фазы ($\alpha^V \geq 0.5$) достигается в большей части вещества испаренного слоя.

Показанное на рис. 2 распределение является промежуточным результатом, поскольку капли могут подвергаться дальнейшему испарению, конденсации. Могут происходить столкновения и объединение капель (коалесценция), которые в наших расчетах не учитываются.

Полученные в расчетах размеры капель соответствуют тем размерам, которые задавались в качестве начальных условий при моделировании конденсации в работе [2].

Проведенные численные исследования процесса абляции материала мишени при воздействии сильнофокусированных электронных пучков показывают образование при дроблении жидкой фазы капель с диаметрами от нескольких десятков до нескольких сотен нанометров. Количество и размеры капель связаны друг с другом, определяются кинетикой процесса испарения и зависят от скорости ввода энергии пучка.

Список литературы

- [1] Ильвес В.Г., Котов Ю.А., Соковнин С.Ю., Рhee С.К. // Рос. нанотехнологии. 2007. № 9–10. С. 96–101.
- [2] Волков Н.Б., Фенько Е.Л., Яловец А.П. // ЖТФ. 2010. Т. 80. В. 10. С. 1–11.
- [3] Волков Н.Б., Майер А.Е., Седой В.С., Фенько Е.Л., Яловец А.П. // ЖТФ. 2010. Т. 80. В. 4. С. 77–81.
- [4] Sedoi V.S., Ivanov Y.F. // Nanotechnology. 2008. V. 19. A. P. 154 710.
- [5] Скрипов В.П. Метастабильная жидкость. М.: Наука, 1972. С. 312.
- [6] Горбунов В.Н., Пирумов У.Г., Рыжов Ю.А. Неравновесная конденсация в высокоскоростных потоках газа. М.: Машиностроение, 1984. С. 200.
- [7] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Статистическая физика. М.: Наука, 1976. Т. 5. Ч. 1. С. 584.
- [8] Dubrovskii V.G., Nazarenko M.V. // J. Chem. Phys. 2010. V. 132. Art. № 114 507.
- [9] Kashchiev D. Nucleation: Basic Theory with Applications. Oxford: Butterworth, 2000.
- [10] Нигматулин Р.И. Динамика многофазных сред. (В 2-х ч.). М.: Наука, 1987.
- [11] Яловец А.П. // ПМТФ. 1997. № 1. С. 151–166.
- [12] Evdokimov O.B., Yalovets A.P. // Nucl. Sci. Engin. 1974. V. 55. P. 67–75.
- [13] Колгатин С.Н., Хачатурьянец А.В. // ТВТ. 1982. Т. 20. № 3. С. 90–94.