

Умрейко Д.С., Комяк А.И., Зажогин А.А., Умрейко С.Д., Вилейшикова Е.В.

ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ОБРАЗОВАНИЯ НАНОЧАСТИЦ И ФРАКТАЛОВ ОКСИДОВ УРАНА ПЕРЕМЕННОЙ ВАЛЕНТНОСТИ НА ПОВЕРХНОСТИ СТЕКЛА ПРИ ЛАЗЕРНОМ НАПЫЛЕНИИ ТОНКИХ ПЛЕНОК СДВОЕННЫМИ ЛАЗЕРНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

Методом лазерной атомно-эмиссионной многоканальной спектроскопии (спектрометр LSS-1), исследован процесс формирования тонких пленок оксидов урана на поверхности стекла при воздействии мощных сдвоенных лазерных импульсов на поверхность пористых твердых тел (ПТТ), содержащих в объеме различные соединения уранатов аммония. Показано, что управлять процессами плазмохимического образования и выхода оксидов урана переменной валентности из объема ПТТ можно изменяя, как плотность падающей энергии лазерного излучения, так и время задержки прихода второго сдвоенного лазерного импульса. Обсуждены возможные причины, объясняющие получаемые результаты.

Катализаторы и каталитические технологии являются структурно-образующей основой современной химической, нефтехимической и многих других отраслей промышленности [1]. Эффективностью катализаторов определяется уровень энергетических, материальных и капитальных затрат, экология производства, конкурентоспособность продукции. Известно, что внедрение лучших по характеристикам катализаторов на порядок, а то и два эффективнее других технических усовершенствований. Одним из перспективных способов получения пленок оксидов урана, как катализаторов, на твердом носителе может быть способ, основанный на процессе воздействия импульсов лазерного излучения на пористые тела, содержащие в себе различные соединения уранатов аммония.

Для проведения исследований использовался лазерный многоканальный атомно-эмиссионный спектрометр LSS-1. В качестве источника абляции и возбуждения приповерхностной плазмы спектрометр включает в себя двухимпульсный неодимовый лазер с регулируемой энергией и интервалом между импульсами (модель LS2131 DM). Средняя длительность импульса ≈ 15 нс.

Уранаты аммония различного состава были получены непосредственно на поверхности и в объеме пористых тел. В качестве подложки использованы беззольные химические бумажные фильтры. Для получения осадков уранатов использовались водные растворы NH_4OH и уранилнитрата $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, которые наносились последовательно на фильтр. Зависимости интенсивности ионной линии урана U II ($\lambda = 385,958$ нм) в эмиссионных спектрах от энергии импульсов для различных между импульсных интервалов приведены на рис. 1а. Фотографии поверхности стекла с нанесенной пленкой оксидов урана, полученные с помощью микроинтерферометра Линника МИИ-4 при увеличении в 150 раз, приведены на рисунке 1б. Энергия каждого импульса излучения ≈ 55 мДж, а временной интервал между сдвоенными импульсами – 10 мкс. Расстояние между мишенью и поверхностью стекла 5 мм, угол – 45° .

Для более детального изучения продуктов, образующихся при облучении уранатов аммония, нами зарегистрированы спектры электронного поглощения их в ацетоне. На рис. 2 приведены спектры продуктов полученных при воздействии 1000 сдвоенных импульсов. Из приведенных данных видно, что интенсивность полос поглощения трехвалентного урана (область 900 нм) значительно выше, чем для пяти- и четырехвалентного урана (область 600 – 700 нм) (рис. 2а) [2]. Через 24 часа интенсивности полос принадлежащих неустойчивым трех- и пятивалентным оксидам урана (рис. 2б) существенно уменьшается, что свидетельствует о их преобразовании в более устойчивые четырех- и шестивалентные состояния.

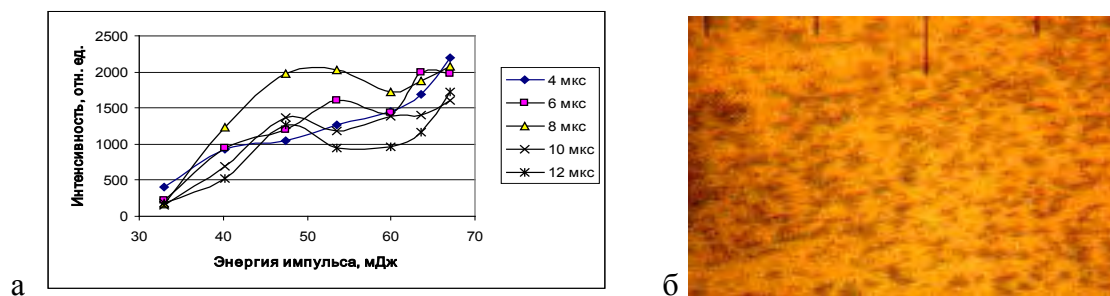


Рисунок 1. Зависимость интенсивности ионной линии урана U II ($\lambda=385,958$ нм) в эмиссионных спектрах от энергии импульсов для различных между импульсных интервалов (а), фотография поверхности стекла при воздействии 200 сдвоенных импульсов.

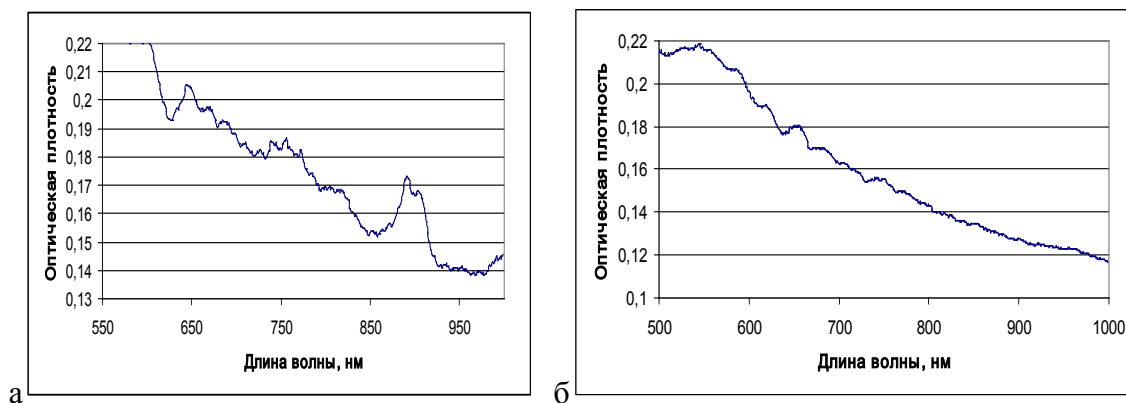


Рисунок 2. Спектры электронного поглощения продуктов облучения: а – свежих; б - через 24 часа.

При использовании режима сдвоенных импульсов на первичные процессы плазмообразования будут накладываться процессы нагрева и испарения аэрозолей, обусловленные действием второго импульса. Температура плазмы, доходящая до нескольких десятков тысяч градусов, определяет наличие в ней ионов, электронов, радикалов и нейтральных частиц, находящихся в возбужденном состоянии. Наличие таких частиц приводит к высоким скоростям взаимодействия частиц и быстрому протеканию реакций (10^{-5} – 10^{-8} с) в плазме и на поверхности твердого тела. Выбирая энергию импульсов и междуимпульсный интервал можно управлять процессами поступления урана, как в плазму, так и на поверхность твердого тела.

Список литературы

1. З.Р. Исмагилов, С.В. Кунцевич, В.В. Кузнецов и др. Исследование новых катализаторов на основе оксидов урана // Кинет. катал. 2007. Т. 48, № 4. Р. 544 – 553.
2. D. Majumdar, K. Balasubramanian, H. Nitsche. // Chemical Physics Letters. 2002. V.363. P. 143 – 151.

Умрейко Д.С., Умрейко С.Д. НИИ прикладных физических проблем им. А.Н.Севченко БГУ.

Комяк А.И., Зажогин А.А., Вилейшикова Е.В. Белорусский государственный университет, Минск, e-mail: zajogin_an@mail.ru.