

УДК 621.793.1

**Исследование эффективности осаждения свинца для задач
плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива**

Н. Н. Антонов, С. Н. Жабин, А. В. Гавриков, В. П. Смирнов, Р. А. Тимирханов

Апробация метода плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива подразумевает использование модельных веществ, при этом необходимо решить задачи перевода модельного вещества из конденсированного состояния в плазменное, а также его сбора на коллекторы. В настоящей работе представлены результаты изучения коэффициента конденсации Рb на поверхность коллектора. На основании экспериментальных данных и созданной с применением метода Монте-Карло расчетной модели было определено, что значения этого коэффициента превышают 75 % при средних температурах коллектора порядка 70 °С.

PACS: 68.03.Fg

Ключевые слова: плазменная сепарация, испарение свинца, эффективность осаждения, адгезия.

Введение

Повышение эффективности использования ресурсов является одной из важных задач ядерной энергетики. Развиваемый в настоящее время метод плазменной сепарации материалов — возможный путь решения проблемы переработки отработавшего ядерного топлива ОЯТ [1—7]. Суть этого метода заключается в том, что ОЯТ из конденсированного состояния переводится в поток низкотемпературной плазмы и инжектируется в камеру сепарации, где в условиях скомпенсированного объемного заряда и в специальной конфигурации электрического и магнитного полей осуществляется разделение по группам масс [3]. Для лабораторной апробации метода плазменной сепарации необходимо определить эффективность осаждения или конденсации (т.е. вероятность конденсации частицы на подложку при первом взаимодействии) модельных элементов на различные подложки

коллекторов. Технологическая необходимость избежать потери вещества требует обеспечить условия, при которых эффективность осаждения будет близкой к 100 % или создать такую геометрию коллекторов, при которой возврат разделенных веществ в камеру сепарации будет минимальным. Знание адгезионных свойств позволит подобрать эффективный технологический процесс удаления покрытий с подложек. В качестве вещества, моделирующего динамику тяжелой компоненты ОЯТ (минорных актиноидов), рассматривается свинец.

Концепция метода плазменной сепарации [3] подразумевает, что энергии осаждаемых на коллекторы частиц будут малы (порядка единиц эВ). В работе предполагается, что кинетика взаимодействия с подложкой низкоэнергетичных ионов близка к кинетике взаимодействия нейтральной компоненты пара с тепловой энергией. Исходя из этого, нанесение исследуемых покрытий в экспериментах осуществлялось потоком нейтральных атомов. Целью данной работы является исследование коэффициентов осаждения свинца на коллектор.

Эффективность осаждения

Возможны два механизма, по которым падающий атом может вернуться в парообразное состояние: а) атом может сохранить достаточную кинетическую энергию после взаимодействия с поверхностью и отразиться от неё, б) атом может приобрести дополнительную кинетическую энергию в термически возбужденном состоянии и по-

Антонов Николай Николаевич, младший научный сотрудник.
Жабин Сергей Николаевич, старший научный сотрудник.
Гавриков Андрей Владимирович, зав. лабораторией.
Смирнов Валентин Пантелеймонович, главный научный сотрудник.

Тимирханов Ринат Асхатович, научный сотрудник.
Объединенный институт высоких температур РАН
(ОИВТ РАН).
Россия, 125412, Москва, ул. Ижорская, 13, стр. 2.
Тел. +7 (925) 201-04-97. E-mail: antonovnickola@gmail.com

Статья поступила в редакцию 5 октября 2016 г.

© Антонов Н. Н., Жабин С. Н., Гавриков А. В., Смирнов В. П., Тимирханов Р. А., 2016

сле нескольких колебаний покинуть поверхность (т.е. переиспариться) [8—10]. Стоит отметить, что, согласно литературным источникам, при низких энергиях частиц (до нескольких эВ), осаждаемых на подложку, переиспарение происходит равномерно во всё полупространство и не зависит от угла падения частицы на поверхность, а наибольшая эффективность конденсации достигается при взаимодействии с поверхностью, состоящей из материала напыляемого покрытия при температурах, близких к температурам жидкого азота ($-195,75\text{ }^\circ\text{C}$) [11, 12]. В работах [13, 14] на примере осаждения серебра было показано, что достижение высокой эффективности осаждения является возможным в достаточно большом диапазоне темпе-

ратур, давлений остаточных газов и потоков осаждаемого вещества.

Для исследования эффективности осаждения модельного вещества на различные подложки была разработана схема эксперимента (см. рис. 1), в котором пар, попадая (в молекулярном режиме) в пространство между двумя плоскими дисками и испытав некоторое число отражений, конденсируется на верхнем или на нижнем диске. Из соотношения распределений толщины покрытий на поверхности отраженного осаждения (обозначение 3 на рисунке 1) и поверхности прямого осаждения (обозначение 2 на рисунке 1) можно сделать вывод об эффективности конденсации. Используемая для этого численная модель описана далее.

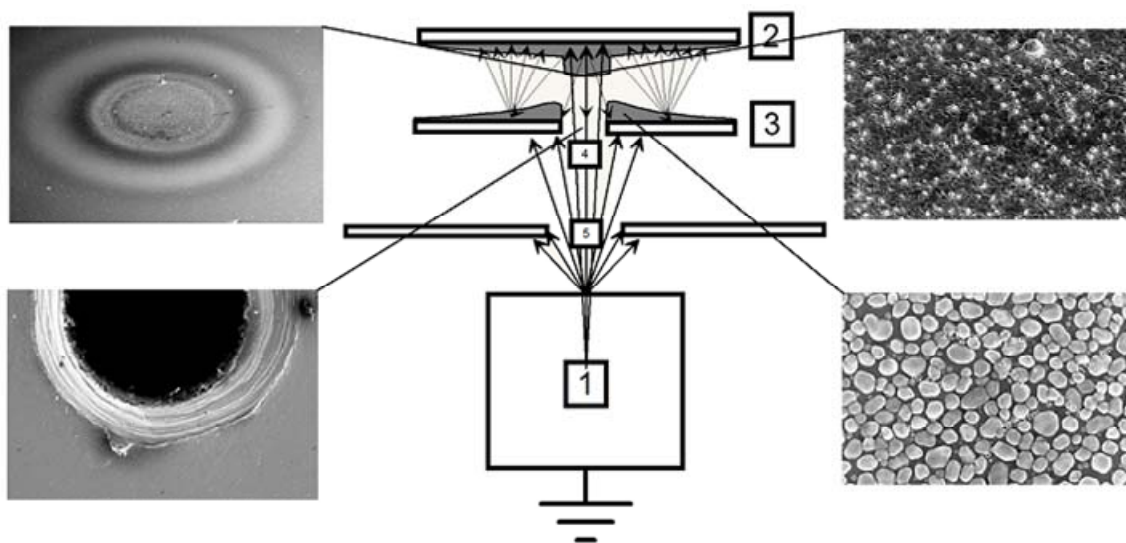


Рис. 1. Схема эксперимента: 1 — испаритель, 2 — исследуемый образец (поверхность прямого осаждения), 3 — исследуемый образец (поверхность отраженного осаждения), 4 и 5 — коллимационные отверстия.

Эксперимент проводился в вакуумной камере с остаточным давлением воздуха на уровне 2×10^{-5} мбар. Внутри испарительной ячейки осуществлялся нагрев свинца до $950\text{ }^\circ\text{C}$. Пучок нейтральных атомов коллимировался и направлялся через отверстие диаметром 1,1 мм в пространство между дисками из исследуемого материала (нержавеющей стали или углерода). Расстояние между дисками было равно 3,9 мм. Напыление осуществлялось 30 минут. После остывания узлов установки образцы извлекались из вакуумной камеры и анализировались. В начальной стадии эксперимента исследуемая подложка подвергалась очистке ионами буферного газа в тлеющем разряде.

Профили толщин пленок анализировались методом растровой электронной микроскопии.

Было установлено, что в экспериментах с подложкой из нержавеющей стали на поверхности прямого осаждения (диск под номером 2 на рис. 1) образуются агломерации размером до 2 мкм. При

этом на диске прямого осаждения потока обнаруживаются места, в которых толщина покрытия находится на уровне 850 нм (покрытие неоднородно). При сканировании образца от центра прямого осаждения потока к периферии было обнаружено, что размер агломераций уменьшается вдоль радиуса диска и падает до 20 нм. При этом расстояния между центрами агломераций становятся больше размера самих образований.

На поверхности отраженного осаждения образуются агломерации размером не более 120 нм, причем при удалении от центра кольца вдоль радиуса их размер уменьшается до 10 нанометров.

Для интерпретации экспериментальных данных была создана численная модель на основе метода Монте-Карло. Основными параметрами, изменение которых допускает модель, являются вероятность конденсации при взаимодействии с поверхностью, угловая функция распределения вероятности переиспарения, радиус дисков и расстояние между ними.

Угловая функция распределения вероятности переиспарения и другие параметры в расчете подбирались так, чтобы результаты моделирования профилей пленок были наиболее близки к профилям пленок, полученных экспериментально. Наилучшее соответствие экспериментальных и численных данных наблюдалось при равновероятном переиспарении в телесный угол $\frac{2\pi}{3}$ вдоль нормали к поверхности осаждения.

На рис. 2 приведены расчетные зависимости толщины покрытия от радиуса диска на поверхности прямого (диск под номером 2 на рисунке 1) и отраженного осаждения (диск под номером 3 на рисунке 1).

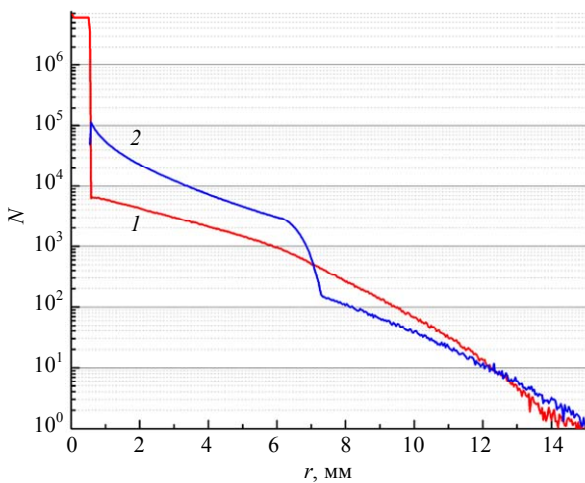


Рис. 2. Зависимость толщины покрытия (количества осажденных частиц N) от радиуса диска r (кривая 1 — поверхность прямого осаждения, кривая 2 — поверхность отраженного осаждения).

Оказалось, что расчетная зависимость отношения толщины отраженного покрытия h_r (толщина покрытия на расстоянии 0,65 мм от центра диска) к толщине покрытия прямого напыления h_d (толщина покрытия в центре диска) от вероятности конденсации при первом соударении (эффективность осаждения) P хорошо аппроксимируется линейной функцией:

$$\frac{h_r}{h_d} = 0,082(1 - P). \quad (1)$$

Применение результатов моделирования для интерпретации полученных экспериментальных данных было затруднено неоднородностью толщины покрытий. Однако вывод об эффективности осаждения был сделан на основании средних значений толщин плёнки.

Усредненная толщина покрытия прямого осаждения в экспериментах с подложкой из нержавеющей стали составила 1,75 мкм (центрально-

ная часть диска 2 на рисунке 1 диаметром 1,1 мм), а толщина отраженного покрытия вблизи коллимационного отверстия (на расстоянии 650 мкм от центра диска) — 35 нм. Используя (1) находим, что эффективность осаждения P в данном эксперименте близка к 75 %. Средняя температура подложек во время эксперимента составляла 70 °С.

Аналогичные исследования были проведены с использованием подложки из углерода. В этом случае на поверхности прямого осаждения (центральная часть диска 2 на рисунке 1 диаметром 1,1 мм) агломерации свинца имели размер порядка 1 мкм. При сканировании вдоль радиуса было найдено, что размер агломераций постепенно уменьшается до нескольких нанометров. На поверхности отраженного осаждения образовывались агломерации размером не более 40 нм и их размер при сканировании вдоль радиуса уменьшался до нескольких нанометров.

Средняя толщина покрытия прямого осаждения составила 1,3 мкм (диск 2 на рисунке 1), а толщина отраженного покрытия вблизи коллимационного отверстия (на расстоянии 650 мкм от центра диска) — 20 нм. Из (1) находим, что эффективность осаждения в данном эксперименте близка к 81 % (при средней температуре подложки около 60 °С).

Адгезионные свойства

Еще одним важным вопросом для процесса плазменной сепарации является удаление осажденного вещества с поверхности коллекторов. Промышленный интерес представляют технологии, способные перерабатывать не менее 1 кг в сутки. Для определения минимальных (необходимых для удаления вещества с поверхности) нагрузок были проведены исследования адгезионных свойств покрытий свинца, нанесённого на дюралюминий Д16Т и нержавеющую сталь (Aisi 304).

Образцы напылялись при температуре внутри испарителя 900 °С в течение 2,5 часов. На рис. 3 приведены фотографии следа индентора на плёнке свинца с подложкой из нержавеющей стали и дюралюминия.

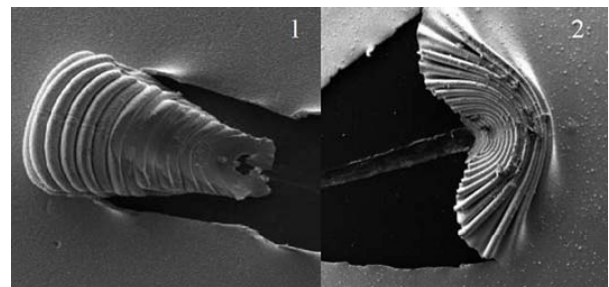


Рис. 3. Результат воздействия индентора на плёнки на поверхности нержавеющей стали Aisi 304(1) и дюралюминия Д16Т(2).

В обоих случаях связь элементов покрытия сильнее, чем связь покрытия с поверхностью. Отслоение плёнки на нержавеющей стали (Aisi 304) начинается при нагрузке 0,45—0,9 Н. Отслоение плёнки на стали Д16Т начинается при нагрузке 0,35—0,9 Н.

Из полученных данных можно сделать вывод о том, что удаление модельного вещества (свинца) с поверхности коллекторов не вызовет затруднений в модельных экспериментах.

Выводы

В работе представлено исследование коэффициента осаждения вещества (свинца), моделирующего тяжелые компоненты ОЯТ, на различные подложки коллекторов (дюралюминий, нержавеющая сталь, углерод). Проведенные эксперименты и предложенная расчетная модель позволили установить, что эффективность осаждения свинца на подложки из нержавеющей стали и углерода, которая составила 75 % и 81 % при средних температурах подложек 70 °С и 60 °С соответственно. Была также исследована адгезия покрытий, нанесённых на подложки из нержавеющей стали и дюралюминия, и было показано, что отрыв нанесенной пленки происходит при 0,45—0,9 Н и 0,35—0,9 Н соответственно. Стоит отметить, что полученные значения нагрузок отслоения позволяют организовать эффективное удаление вещества с поверхности коллекторов с помощью механического воздействия, не прерывая на долгое время работу установки.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 14-29-00231).

ЛИТЕРАТУРА

1. Zhiltsov V. A., Kulygin V. M., Semashko N. N., Skovoroda A. A., Smirnov V. P., Timofeev A. V., Kudryavtsev E. G., Rachkov V. I., Orlov V. V. // *At. Energy* 2006. Vol. 101. No. 4. P. 755.
2. Vorona N. A., Gavrikov A. V., Samokhin A. A., Smirnov V. P., Khomyakov Yu. S. // *Physics of Atomic Nuclei*. 2015. Vol. 78. No. 14. P. 1.
3. Smirnov V. P., Samokhin A. A., Vorona N. A., Gavrikov A. V. // *Plasma Phys. Rep.* 2013. Vol. 39. No. 6. P. 456.
4. Бардаков В. М., Иванов С. Д., Казанцев А. В., Строккин Н. А. // *Прикладная физика*. 2014. № 1. С. 88.
5. Юферов В. Б., Егоров А. М., Ильичева В. О., Шарый С. В., Живанков К. И. // *ВАНТ*. 2013. № 2. С. 148.
6. Bardakov V. M., Kichigin G. N., Strokina N. A., Tsaregorodtsev E. O. // *Tech. Phys.* 2010. Vol. 55. P. 1504.
7. Коробкин Ю. В., Лебедев Н. В., Паперный В. Л. // *Письма в ЖТФ*. 2012. Т. 38. № 6. С. 1.
8. Burton W. K., Cabrera N., Frank F. C. // *Phil. Trans. Roy. Soc. London* 1951. Vol. A243. P. 299.
9. Hirth J. P., Pound G. M. // *J. Chem. Phys.* 1960. Vol. 64. P. 619.
10. Rapp R. A., Hirth J. P., Pound G. M. // *J. Chem. Phys.* 1961. Vol. 34. No. 1. P. 184.
11. Pound G. M. // *J. Chem. Phys.* 1972. Vol. 1. No. 1. P. 135.
12. Knudsen M. // *Ann. Physik.* 1960. Vol. 50. P. 472.
13. Yang L., Simnad M., Pound G. M. // *Acta Met.* 1954. Vol. 2. P. 470.
14. Rapp R. A., Hirth J. P., Pound G. M. // *Can. J. Phys.* 1960. Vol. 38. P. 709.

The study of a lead deposition efficiency applied for the plasma separation method of a spent nuclear fuel

N. N. Antonov, S. N. Zhabin, A. V. Gavrikov, V. P. Smirnov, and R. A. Timirkhanov

Joint Institute for High Temperatures of the Russian Academy of Sciences
Bld. 13, 2 Izhorskaya str., Moscow 125412, Russia
E-mail: antonovnickola@gmail.com

Received October 5, 2016

The spent nuclear fuel (SNF) plasma separation method approbation makes use of model substances. Thus, it is necessary to solve the problem of material conversion into a cold plasma flow as well, as the problem of deposition on collectors. For this last purpose, we carried out the research of the condensation coefficients of Pb on various substrates. For the experimental data analysis, a numerical model based on the Monte Carlo method was used. The research results showed that deposition coefficients at medium temperatures of substrates near 70 °C didn't drop lower than 75 %.

PACS: 68.03.Fg

Keywords: plasma separation method, lead evaporation, deposition efficiency, adhesion.

REFERENCES

1. V. A. Zhil'tsov, V. M. Kulygin, N. N. Semashko, A. A. Skovoroda, V. P. Smirnov, A. V. Timofeev, E. G. Kudryavtsev, V. I. Rachkov, and V. V. Orlov, *At. Energy* **101**, 755 (2006).
2. N. A. Vorona, A. V. Gavrikov, A. A. Samokhin, V. P. Smirnov, and Yu. S. Khomyakov, *Phys. Atom. Nuclei* **78**, 1624 (2015).
3. V. P. Smirnov, A. A. Samokhin, N. A. Vorona, and A. V. Gavrikov, *Plasma Phys. Rep.* **39**, 456 (2013).
4. V. M. Bardakov, S. D. Ivanov, A. V. Kazantsev, and N. A. Strokin, *Prikl. Fiz.*, No. 1, 88 (2014).
5. V. B. Yuferov, A. M. Yegorov, V. O. Ilichova, S. V. Shariy, and K. I. Zhivankov, *Problems of At. Science and Tech. (PAST)*, No. 2, 148 (2013).
6. V. M. Bardakov, G. N. Kichigin, N. A. Strokin, and E. O. Tsaregorodtsev, *Tech. Phys.* **55**, 1504 (2010).
7. Y. V. Korobkin, N. V. Lebedev, and V. L. Paperny, *Tech. Phys. Lett.* **38**, 254 (2012).
8. W. K. Burton, N. Cabrera, and F. C. Frank, *Phil. Trans. Roy. Soc. London* **A243**, 299 (1951).
9. J. P. Hirth and G. M. Pound, *J. Phys. Chem.* **64**, 619 (1960).
10. R. A. Rapp, J.P. Hirth, and G.M. Pound, *J. Chem. Phys.* **34**, 184 (1961).
11. G. M. Pound, *J. Chem. Phys.* **1**, 135 (1972).
12. M. Knudsen, *Ann. Physik* **50**, 472 (1916).
13. L. Yang, M. Simnad, and G. M. Pound, *Acta Met.* **2**, 470 (1954).
14. R. A. Rapp, J. P. Hirth, and G. M. Pound, *Can. J. Phys.* **38**, 709 (1960).