

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение
высшего образования
Национальный исследовательский Томский политехнический университет

На правах рукописи

Хорохорин Дмитрий Михайлович

**ИССЛЕДОВАНИЕ ОЧИСТКИ МЕТАЛЛОВ И СВАРНЫХ ШВОВ ОТ
ЧАСТИЦ МОКС-ТОПЛИВА ЛАЗЕРНЫМ ИЗЛУЧЕНИЕМ**

1.3.2 – Приборы и методы экспериментальной физики

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:

доктор технических наук
Хан Валерий Алексеевич

Томск – 2023 г.

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ		5
Глава 1 ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ		14
1.1 Процессы и технологии, приводящие к загрязнению поверхности твэлов		14
1.2 Радиоактивное загрязнение, образующееся при производстве ядерного топлива		15
1.3 Методы контроля радиоактивного загрязнения поверхности		17
1.4 Методы очистки поверхностей от дисперсных частиц		19
1.4.1 Методы удаления поверхностного радиоактивного загрязнения с трубки твэла		21
1.4.2 Лазерная очистки от поверхностного загрязнения металлов дисперсными частицами		23
1.4.2.1 Выбор источника лазерного излучения для очистки поверхности..		26
1.4.2.2 Физико-химические процессы, протекающие при лазерном воздействии на поверхность металлов		29
1.5 Распространение интенсивного лазерного излучения через атмосферный аэрозоль или парогазовое облако при лазерном пробое		33
1.6 Выводы по главе 1		36
Глава 2 РАЗРАБОТКА АВТОМАТИЗИРОВАННОГО МЕТОДА КОНТРОЛЯ АЛЬФА-ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОВЕРХНОСТИ ТВЭЛОВ ДЛЯ УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО ТОПЛИВА.....		37
2.1 Контроль радиоактивного загрязнения в промышленных условиях.....		37
2.2 Методика контроля альфа-загрязнения поверхности твэла		39
2.3 Разработка автоматизированного метода контроля общего альфа-загрязнения поверхности твэла для перспективных требований		41

2.4	Метод контроля активности нефиксированного загрязнения, обусловленной радиоактивными дисперсными частицами.....	53
2.5	Выводы по главе 2	58
Глава 3	РАЗРАБОТКА МЕТОДА ЛАЗЕРНОЙ ОЧИСТКИ СВАРНЫХ ШВОВ СТАЛИ ОТ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ ЧАСТИЦ ПЫЛИ	59
3.1	Обоснование метода лазерной очистки от поверхностного загрязнения частицами пыли	60
3.2	Исследование лазерной очистки поверхности металла от микрочастиц	65
3.3	Моделирование лазерного нагрева микрочастиц, фиксированных в сварном шве стали	74
3.4	Анализ метода лазерной очистки сварного шва трубок твэла	85
3.5	Выводы по главе 3	87
Глава 4	РАЗРАБОТКА МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ПРОЦЕССА ЛАЗЕРНОЙ ОЧИСТКИ ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛОВ ОТ ДИСПЕРСНЫХ ЧАСТИЦ	88
4.1	Анализ процессов, протекающих при формировании аэрозоля, возникающего при лазерной абляции металлов	88
4.2	Анализ процессов, связанных с прохождением лазерного излучения через аэрозоль	90
4.3	Процессы нуклеации после воздействия лазерного излучения	91
4.3.1	Исследование влияния магнитного поля на процесс нуклеации	97
4.3.2	Анализ фазового перехода в смеси паров оксидов урана и плутония	102
4.4	Непрерывный контроль процесса лазерной очистки поверхности металлов	103

4.4.1	Контроль степени лазерной очистки поверхности металлов в воздухе по плазменной частоте	104
4.4.2	Исследование процесса сухой и мокрой лазерной дезактивации поверхности металла, по величине сигналов рассеянного излучения	107
4.5	Выводы по главе 4	112
	ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ. ЗАКЛЮЧЕНИЕ	113
	СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	115
	Приложение А.....	133

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность работы. В современной мировой атомной промышленности стоит задача вывода из эксплуатации объектов атомной энергетики, введенных с 1960-х годов и выработавших свой ресурс в настоящее время. При этом требуется утилизация радиоактивных отходов (РАО), образующихся в результате использования объектов ядерно-топливного цикла (ЯТЦ). РАО образуется во многих технологических процессах. Например, в результате переработки отработанного ядерного топлива (ОЯТ) образуются высокоактивные композиции, содержащие, в том числе, уран, плутоний, минорные актиноиды. Также, при производстве традиционного топлива для атомных электростанций (АЭС) на основе диоксида урана накапливается обедненный гексафторид урана.

Для снижения количества РАО и увеличения эффективности ЯТЦ, реализуются технологии по вовлечению в ядерное топливо большего количества изотопов. Например, использование быстрых нейтронов в ядерном реакторе позволяет воспроизводить ядерное горючее, вовлекать долгоживущие актиноиды при получении тепловой и электрической энергии.

Вовлечение в ЯТЦ большего числа изотопов, основную долю которых составляют высокоактивные актиноиды, требует дополнительных мероприятий по радиационному контролю и применению новых технологических решений с высокой степенью автоматизации. Промышленное производство в России уран-плутониевого мокс-топлива началось с 2015 года. Использование высокоактивного плутония в топливе, может вызывать сильное поверхностное α -загрязнение технологического оборудования, тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) и тепловыделяющих сборок при попадании частиц необлученного топлива на их поверхность. Находящиеся на поверхностях изделий, технологического оборудования или в воздухе микрочастицы уран-плутониевого топлива повышают дозовую нагрузку на персонал. Контроль поверхностного загрязнения α -активных радионуклидов осложняется малым пробегом α -частицы в воздушной атмосфере. Поэтому невозможно проводить непрерывный дистанционный

контроль поверхностного загрязнения.

Производство мокс-топлива сопровождается попаданием микрочастиц оксидов урана и плутония на поверхность трубки твэла. В зоне загрузки трубки твэла топливными таблетками альфа-загрязнение максимально и осложняется фиксацией частиц топлива в сварочном шве при сварке заглушки и трубки. Существующий метод сухой дезактивации – тканевая протирка, не удаляет фиксированные оксидные частицы с поверхности и из сварного шва твэла. Поэтому актуальны исследования новых методов дезактивации твэла от микрочастиц оксидного уран-плутониевого топлива.

Степень разработанности темы

Лазерные технологии внедряются в атомную промышленность. Начиная с 1985 года, мощное лазерное излучение используется при фрагментировании и переработке ОЯТ. Известны методы удаления радиоактивных микрочастиц с твердых поверхностей воздействием высокоинтенсивного лазерного излучения. Применение лазерного излучения для очистки поверхностей от радиоактивного загрязнения активно исследуется с 1995 года в США, Канаде, Японии, Франции, России. Существенный вклад в изучении вопросов лазерной дезактивации внесли российские и зарубежные ученые, такие как В.П. Вейко, М. Afzal, P. Delaporte, F. Champonnois, M. Sentis, T. Hirabayashi, Y. Kameo, A.J. Potiens и другие. Начиная с 2009 года, исследователи из Индии A. Kumar, J.P. Nilaya, D.J. Biswas, R.B. Bhatt публикуют результаты лазерной дезактивации стали, а в 2017 году предложили использовать лазерное излучение для дезактивации поверхности твэлов. В этой работе приводятся результаты исследований по удалению радиоактивных микрочастиц с трубки твэла излучением неодимового лазера, которые удерживаются на поверхности только за счет сил адгезии. Учитывая особенность конструкции твэлов зарубежного исполнения, остаются неисследованными вопросы лазерной дезактивации наиболее загрязненных областей поверхности твэла (сварочных швов) от фиксированного загрязнения.

Процессы взаимодействия высокоинтенсивного лазерного излучения с веществом при лазерной очистке поверхности и способы оптимизации процесса

лазерной дезактивации рассматриваются с 2000-х годов такими учеными как Б.С. Лукьянчук, Л.Я. Минько, J.B. Heroux, E. Sacher, M. Meunier, Jong Myung Lee и другими. Тем не менее, остается неизученной область непрерывного контроля качества лазерной дезактивации поверхности. Также, с внедрением новых топливных композиций и технологий в ЯТЦ, требуется изучение вопросов применения лазерного излучения к новым материалам для оптимизации процесса поверхностной дезактивации.

Объект исследования – поверхность и сварной шов твэла с мокс-топливом реактора БН-800.

Предмет исследования – физико-химические процессы, протекающие при лазерной дезактивации поверхности и сварного шва твэла от оксидных частиц актиноидов и лантаноидов.

Целью работы является разработка метода лазерной очистки от радиоактивного загрязнения поверхности твэлов с мокс-топливом.

Для достижения поставленной цели решались следующие **задачи**.

1. Изучить физико-химические процессы, протекающие при воздействии лазерного излучения на поверхность стальной пластины ЧС-68, в которой содержатся микрочастицы UO_2 , PuO_2 и CeO_2 .

2. Разработать бесконтактный метод контроля полноты очистки от радиоактивного загрязнения поверхности твэлов с мокс-топливом.

Научная новизна результатов исследования заключается в следующем.

1. Впервые определен диапазон интенсивностей импульсов миллисекундной длительности неодимового лазера, позволяющий очистить сталь ЧС-68 от частично утопленных в поверхность металла микрочастиц CeO_2 и недостаточный для увеличения шероховатости поверхности с глубиной впадины профиля не более 20 мкм, регламентируемой ТУ на поверхность твэла.

2. Впервые показано, что при облучении импульсами CO_2 -лазера длительностью 50 нс и интенсивностью 25 МВт/см² микрочастицы UO_2 и PuO_2 диаметром 0,5 мкм нагреваются до точки кипения, а ThO_2 и стали - нет.

3. Показана возможность использования среды с максимальным пробегом α -частиц в автоматизированной камере контроля общего α -загрязнения поверхности твэла для уменьшения порога измерения.

4. Показано, что при лазерной абляции поверхности стали ЧС-68, находящейся под слоем воды или в газовой среде, миллисекундными импульсами неодимового лазера, амплитуда интенсивности импульсов рассеянного излучения пропорциональна количеству микрочастиц CeO_2 , частично утопленных в поверхностный слой металла.

5. Установлено, что при лазерной абляции поверхности стали ЧС-68 частота электромагнитной волны, излучаемой плазмой лазерного пробоя, пропорциональна количеству полупроводниковых микрочастиц CeO_2 , частично утопленных в поверхностный слой металла.

6. Впервые показано, что постоянное магнитное поле с индуктивностью 30-180 мТл влияет на распределение по размерам дисперсных частиц, образующихся при охлаждении парогазовой смеси, содержащей оксидные частицы, как за счет увеличения скорости формирования ядер конденсации, так и интенсификации роста микрочастиц.

Теоретическая значимость результатов исследований состоит в следующем.

1. Проанализированы и обобщены известные результаты по лазерной абляции металлической мишени, которые использованы при анализе данных, получаемых при лазерной очистке поверхности твэлов от частично утопленных в металл радиоактивных микрочастиц UO_2 и PuO_2 .

2. Систематизированы данные по лазерному пробоя для мишени, находящейся под слоем воды. Выводы по результатам анализа подтверждены экспериментально при лазерной абляции миллисекундными импульсами неодимового лазера поверхности стали ЧС-68, находящейся под слоем воды.

3. Проанализированы и обобщены известные данные по влиянию слабого постоянного магнитного поля на фазовый переход при охлаждении низкотемпературной плазмы. Полученные закономерности успешно

использованы для анализа процесса конденсации паров UO_2 и PuO_2 .

Практическая значимость результатов исследования состоит в следующем.

1. Результаты экспериментальных исследований по лазерной абляции стали ЧС-68 от частично утопленных в металл полупроводниковых микрочастиц CeO_2 могут быть использованы при разработке технологии лазерной дезактивации сварного шва твэлов с мокс-топливом.

2. Результаты моделирования нагрева микрочастиц UO_2 и PuO_2 , ThO_2 и стали диаметром 0,5 мкм при облучении импульсами CO_2 -лазера длительностью 50 нс и интенсивностью 25 МВт/см² могут быть использованы при разработке технологии лазерной дезактивации сварного шва твэлов с мокс-топливом.

3. Испытана камера объемом 5,9 л измерительного блока для автоматизированного контроля α -загрязнения поверхности твэлов различного исполнения, которая при минимальном расходе гелия 33 л/ч позволяет до 2,8 раз уменьшить порог измерения.

4. Бесконтактные методы контроля полноты лазерной очистки от микрочастиц CeO_2 , расположенных в приповерхностном слое сплава ЧС-68, могут быть использованы при разработке технологии лазерной дезактивации сварного шва твэлов с мокс-топливом, а также в лазерных технологиях обработки металла.

5. Разработанная модель роста дисперсных частиц в слабом постоянном магнитном поле вносит вклад в теорию нуклеации. Результаты исследования парамагнитного воздействия постоянного магнитного поля 30-180 мТл на пары парамагнитных веществ при их охлаждении, могут быть использованы при разработке технологии дезактивации сварного шва твэлов с мокс-топливом лазерными импульсами миллисекундной длительности.

Методология и методы диссертационного исследования

Методология работы на предварительном этапе включает моделирование физико-химических процессов, возникающих при дезактивации поверхности твэлов, с последующим наблюдением результатов на оригинальных экспериментальных установках.

Контроль α -загрязнения поверхностей осуществляли прямым измерением активности и методом гамма-спектрометрии. Газовые потоки в измерительной камере изучали с использованием математического моделирования, а для определения состава газа использовали масс-спектрометрический метод. Теплофизические процессы, протекающие при воздействии лазерного излучения на металл и полупроводниковые оксидные частицы, исследовали с помощью физико-математического моделирования. Результат воздействия лазерного излучения на металл и полупроводниковые оксидные частицы, а также изменение размеров частиц, полученных в результате абляции, исследовали с применением сканирующей электронной и оптической микроскопии. Анализ элементного состава продуктов абляции определялся с помощью энергодисперсионного анализатора сканирующего электронного микроскопа. Рассеяние лазерного излучения исследовали при помощи оптической спектрометрии.

На защиту выносятся следующие **научные положения**.

1. Импульсное излучение Nd-лазера миллисекундной длительности в диапазоне интенсивностей 17-27 кВт/см² позволяет полностью удалять микрочастицы CeO₂, находящиеся в поверхностном слое стали ЧС-68 толщиной до 20 мкм, путем преимущественного их испарения при лазерном нагреве.

2. Импульсное излучение CO₂-лазера длительностью более 50 нс и интенсивностью более 25 МВт/см² позволяет очищать с коэффициентом дезактивации до 5,33 поверхностный слой стали ЧС-68 толщиной менее 20 мкм от микрочастиц UO₂ и PuO₂ диаметром не более 0,5 мкм, путем их селективного испарения.

3. Длительность рассеянных лазерных импульсов, регистрируемых при лазерной абляции микрочастиц CeO₂, находящихся в поверхностном слое металла, пропорциональна количеству микрочастиц подвергающихся ионизации, при облучении как в газовой, так и в жидкой фазах.

4. Постоянное магнитное поле с индукцией 30-180 мТл увеличивает скорость нуклеации паров путем интенсификации триплет-синглетного перехода,

при лазерной абляции мишени миллисекундными импульсами, что увеличивает до 1,5 раз энергию лазерного импульса, попадающего на мишень.

5. Пороговое значение для автоматизированного контроля α -загрязнения поверхности твэла при лазерной дезактивации в камере проходного типа объемом 5,9 л уменьшается в 2,8 раз при замене воздушной атмосферы на гелиевую, за счет увеличения длины пробега α -частиц до 12 см.

Достоверность полученных результатов исследования обеспечена использованием современной измерительной аппаратуры и специализированного программного обеспечения, общепризнанных методик измерений, а также воспроизводимостью результатов экспериментальных исследований, проводимых при идентичных условиях. Аналитически и экспериментально подтверждено соответствие полученных результатов с работами идентичного характера других авторов на ряде выбранных объектов в области использования лазерного излучения для обработки поверхности, при различных условиях, и взаимодействия лазерного излучения с веществом. Измерительное оборудование, используемое в исследованиях, было калибровано. Исследования лазерных кратеров и продуктов абляции проведены с помощью электронного микроскопа в Томском региональном центре коллективного пользования и профилометра в Институте физики прочности и материаловедения Сибирского отделения Российской академии наук, обученными специалистами по утвержденным методикам.

Специальность диссертации

Выбор специальности диссертации 1.3.2 – Приборы и методы экспериментальной физики в отрасли физико-математических наук, обусловлен тем, что в ней: приводятся результаты математического моделирования процесса нагрева дисперсных частиц в поле лазерного излучения на основе полученных зависимостей (3.14) и (3.15); предложено математическое описание (см. формулы (4.13) и (4.16)) процесса изменения скорости нуклеации паров, при лазерной абляции мишени миллисекундными импульсами, за счет интенсификации триплет-синглетного перехода в постоянном магнитном поле; апробированы

новые методы непрерывного контроля полноты лазерной дезактивации трубок твэлов; созданы оригинальные экспериментальные установки для разработки метода лазерной дезактивации твэлов, соответствующие паспорту выбранной специальности.

Личный вклад автора состоит в непосредственном участии в разработке методик и проведении экспериментальных исследований, обработке, анализе и обобщении полученных результатов, разработке рекомендаций их практического использования, формулировке защищаемых положений и выводов.

Апробация работы. Результаты диссертационного исследования докладывались и обсуждались в г. Москва, Томск, Снежинск, Северск на следующих научных сессиях и конференциях:

- IV Международная научная конференция «Изотопы: технологии, материалы и применение», г. Томск, 30 октября – 3 ноября 2017 года;

- IX Школа-конференция молодых атомщиков Сибири, г. Томск, 17 октября – 19 октября 2018 года;

- V Международная научная конференция «Изотопы: технологии, материалы и применение», г. Томск, 29 октября – 2 ноября 2018 года;

- Международная научно-практическая конференция студентов, аспирантов и молодых ученых «Физико-химические и изотопные технологии в науке, промышленности и медицине», г. Томск, 30 сентября – 04 октября 2019 года;

- 14-й Международный форум по стратегическим технологиям (IFOST-2019), г. Томск, 14 – 17 октября 2019 года;

- X Международная научно-практическая конференция «Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине», г. Томск, 9 – 11 сентября 2020 года;

- VI Международная научная конференция «Изотопы: технологии, материалы и применение», г. Томск, 26 – 29 октября 2020 года;

- XXVII конференция Аэрозоли Сибири, г. Томск 23-24 ноября 2020 года;

- Научная сессия НИЯУ МИФИ «Инновационные ядерные технологии», г. Снежинск, 22 – 23 декабря 2020 года;

- Научная сессия НИЯУ МИФИ «Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий», г. Северск, 12 – 16 апреля 2021 года;

- Молодежная научно-практическая конференция «Материалы и технологии в атомной энергетике», г. Москва, АО «ВНИИНМ», 22-23 июня 2022 года.

Публикации.

По материалам диссертационного исследования опубликованы 33 печатные работы, включая 6 статей: 5 в рецензируемых научных журналах рекомендованных ВАК РФ (из которых 4 статьи имеют англоязычный вариант в журналах, индексируемых в базе данных Scopus) и 1 в журнале, индексируемом в базе данных Scopus. Получены 2 патента РФ.

Структура и объем диссертации.

Диссертационная работа состоит из введения, 4 глав, заключения и списка литературы. Работа изложена на 133 страницах машинописного текста, содержит 30 рисунков, 4 таблицы, 54 формулы, 172 источника цитируемой литературы.

ГЛАВА 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

1.1 Процессы и технологии, приводящие к загрязнению поверхности твэлов

Основные концепции развития атомной отрасли в мире, предполагают вовлечение всё большего количества нуклидов в ЯТЦ и переход к замкнутому ЯТЦ. Активно исследуется применение топливных композиций, которые содержат изотопы урана, плутония и тория в реакторах различного типа [1 - 4]. Технология использования уран-плутониевого топлива в быстрых реакторах позволяет утилизировать минорные актиноиды и выделенный ранее плутоний, в том числе оружейного качества [5, 6, 7]. Поэтому в настоящее время реализуется промышленное производство топливных композиций на основе оксидного, нитридного и карбидного уран-плутониевого топлива [8].

Технологический процесс производства мокс-топлива отличается во многом от технологического процесса производства традиционного топлива на основе диоксида урана [9, 10]. Например, при изготовлении твэлов с мокс-топливом, контролируется загрязнение внешней поверхности трубки твэла альфа-активными нуклидами. Такие требования вызваны использованием в мокс-топливе высокоактивного плутония, который распадается преимущественно по каналу альфа-распада. Поэтому наличие на поверхности трубки твэла мельчайших частиц уран-плутониевого топлива, формирует значительное поверхностное альфа-загрязнение. Технология изготовления твэлов предусматривает формирование топливного столба определенной длины, состоящего из таблеток мокс-топлива. Загрузка трубы в сборе топливным столбом сопровождается попаданием микрочастиц топлива на торец трубки. При проведении операции герметизации твэла, которая заключается в приварке верхней заглушки твэла, частицы оксидов фиксируются в поверхностном слое сварного шва между трубкой и заглушкой. В результате неизбежно формируется поверхностное загрязнение твэла, включая сварочный шов верхней заглушки. Поэтому альфа-загрязнение твэла вызвано частицами мокс-топлива, которые находятся не только на поверхности трубки, а также на различной глубине сварочного шва верхней

заглушки твэла в виде включений. Интенсивность альфа-загрязнения на поверхности твэла зависит от корректной работы и изношенности частей технологического оборудования, а также качества исходного сырья мокс-топлива: гранулометрического состава порошков UO_2 и PuO_2 , режимов прессования и спекания таблеток.

После приварки верхней заглушки твэла проводится дезактивация поверхности трубки с последующим контролем наличия альфа-загрязнения. При контроле поверхностного загрязнения определяют активность внешней поверхности трубки твэла по всей длине. Требования технических условий 1К.10815.00.000 на твэл (ТУ) устанавливают допустимое общее радиоактивное загрязнение внешней поверхности трубок – активность не должна превышать нескольких десятков альфа-частиц на 1 см^2 за 1 минуту. Контроль альфа-загрязнения поверхности твэлов проводится на нескольких стадиях производства, в том числе и перед упаковкой для отправки. В случае превышения допустимых значений поверхностного альфа-загрязнения изделие бракуется. Поэтому важно использовать методы дезактивации, обеспечивающие качественную очистку поверхности продукции от радиоактивного загрязнения.

1.2 Радиоактивное загрязнение, образующееся при производстве ядерного топлива

Производство уран-плутониевого топлива связано с переработкой ОЯТ для выделения урана и плутония [11, 12]. Также используются методы переработки бракованной (не облученной) продукции с целью её возврата в технологический процесс с помощью физического (термообработка), химического (растворение), механического (перемалывание), лазерного, плазменного, микроволнового и других способов [13, 14, 15]. При переработке ОЯТ используемыми в промышленности способами (растворение), требуется использование дорогостоящих реагентов, например, электролитически генерируемого серебра (II) [16], а также образуется значительное количество высокоактивных

жидких радиоактивных отходов (ЖРО) [11]. На сегодняшний день ЖРО успешно перерабатываются с выделением полезных в промышленности изотопов и переводятся в безопасное состояние для окончательного захоронения или длительного хранения концентрированных отходов [17, 18, 19]. Полученные в результате переработки ОЯТ уран и плутоний переводят в товарную форму [11].

В зависимости от начального изотопного состава ОЯТ, режимов работы в реакторе (облучения) и методов его переработки, образуется уран и плутоний с различным изотопным составом. Диоксид урана (ДУ) по изотопному составу можно разделить на регенерированный, обеднённый, природный, обогащенный. Диоксид плутония (ДП) по изотопному составу можно разделить на низкофононый, высокофононый, выровненный, оружейный. Эффективная работа реактора достигается путем использования мокс-топлива с содержанием ДУ и ДП разного изотопного состава в разных пропорциях и размещением ТВС в соответствующих для этого зонах обогащения [20]. Известны технологии использования смеси урана и плутония в реакторах на тепловых нейтронах. Многократное рециклирование уран-плутониевого (ремикс) топлива в тепловых реакторах приводит к ухудшению изотопного состава смеси: увеличение доли четных изотопов плутония, накоплению изотопов ^{232}U , ^{236}U и минорных актиноидов [21]. Поэтому для тепловых реакторов предпочтительно ремикс-топливо с плутонием изотопного состава с минимальным содержанием тяжелых (пороговых) изотопов, полученных в результате однократной переработки ОЯТ. Энергетический спектр нейтронов в реакторах на быстрых нейтронах, способствует приведению изотопного состава топлива к равновесному состоянию [22]. Поэтому использование отвалного урана и высокофонового плутония, изотопного состава подвергавшегося многократному рециклированию в виде мокс-топлива, целесообразно в энергетических реакторах на быстрых нейтронах [23], реализованных только в России.

Ввиду использования в топливе рециклированного урана и плутония, обладающих повышенной активностью и дозовыми нагрузками на персонал [24], при производстве мокс-топлива для АЭС, предъявляются жесткие требования к

поверхностному альфа-загрязнению готовой продукции и технологического оборудования (в соответствии с ТУ - до 50 альфа-частиц на 1 см^2 за 1 минуту). Использование оксидов урана и плутония при производстве топлива приводит к образованию пыли, состоящей из микрочастиц топлива с размером менее ~ 10 мкм. При оседании высокоактивных частиц оксидного топлива формируется значительное поверхностное загрязнение, которое может достигать значений в десятки тысяч альфа-частиц на 1 см^2 за 1 минуту [25].

Плутоний является поливалентным сорбционно-активным элементом, поэтому очень активно сорбируется на поверхности. Исследования показывают, что основная часть радиоактивных нуклидов (до 95%) находится на поверхности материала [26].

1.3 Методы контроля радиоактивного загрязнения поверхности

В основном измерение активности различных радионуклидов основано на регистрации результата взаимодействия ионизирующих частиц с веществом детектора. Природный и обедненный уран в составе уран-плутониевого топлива, вносит малую долю в общее альфа-загрязнение поверхности, так как имеет малую активность, по сравнению с ^{239}Pu ($\sim 1,8 \cdot 10^5$ раз меньше). Основной вклад в поверхностное загрязнение вносит высокоактивный плутоний, ядра которого распадаются в основном с испусканием альфа-частиц. Поэтому попадание небольшого количества частиц мокс-топлива на поверхность технологического оборудования и изделий, формирует сильное альфа-загрязнение.

Определение нахождения на поверхности низкоактивных радионуклидов в небольших количествах, возможно с помощью гамма-спектрометрического метода [27], ввиду возможности выбора времени экспонирования для набора достаточной статистики. К недостаткам данного способа контроля можно отнести необходимость в подготовке образца для измерения активности, а также увеличение времени проведения анализа.

Применение средств радиационного контроля в производстве определяется

технологическим процессом. При производстве топлива заранее известны радионуклиды, задействованные в процессе, и их концентрация. Уран и плутоний, в основном, являются излучателями альфа-частиц. Поэтому для измерения поверхностного загрязнения при производстве мокс-, ремикс- топлива используются детекторы альфа-частиц. Контроль поверхностного загрязнения альфа-излучающими нуклидами, в основном, проводится детекторами со сцинтиллятором из ZnS(Ag). Также, возможно регистрировать альфа-излучение детекторами с активным элементом на основе полупроводникового кремния или детекторами с газоразрядными счетчиками в режиме коронного разряда [28].

Особенность регистрации альфа-излучения состоит в малой длине пробега альфа-частицы в воздухе. При энергии альфа-частицы ~ 5 МэВ полученной в результате распада ^{239}Pu , длина пробега в воздухе составит не более 3 см. Поэтому автоматизированный радиометрический контроль альфа-излучающих нуклидов представляет нетривиальную задачу.

Известны стационарные и переносные установки контроля альфа-излучающих нуклидов, представляющие из себя стойку со встроенными по зонам контроля и выносными сцинтилляционными детекторами [29]. Недостаток использования стационарных установок для определения поверхностного загрязнения радионуклидами, излучающими в основном альфа-частицы, заключается в необходимости использования выносного детектора альфа-частиц в ручном режиме, для поиска небольших локализованных загрязнений.

С точки зрения внешнего ионизирующего облучения, альфа-излучение считается менее опасным, по сравнению с бета-, гамма- и нейтронным излучением. Однако, при попадании альфа-активных радионуклидов внутрь организма представляет серьезную опасность для человека, так как альфа-частица обладает самой высокой степенью ионизации среды, что приводит к повреждению клеток организма. Основное поступление плутония в организм человека в процессе производственной деятельности происходит через органы дыхания (легкие) путем ингаляции аэрозолей, либо с едой при употреблении пищи грязными руками [30]. Воздействие плутония на человеческий организм

приводит к возникновению канцерогенных заболеваний и повышенной дозовой нагрузке [31, 32]. За период трудовой деятельности человека, плутоний из организма практически не выводится [33].

Плутоний в составе мокс-топлива высоко радиотоксичен [34]. В соответствии с нормами радиационной безопасности, загрязнение поверхности кожи и спецодежды не должно превышать 2 и 5 альфа-частиц / (см²·мин) соответственно [35]. Поэтому, при производстве уран-плутониевого топлива, проводится ежесменная оценка поверхностного альфа-загрязнения и измерение объемной активности воздуха.

1.4 Методы очистки поверхностей от дисперсных частиц

Процесс дезактивации заключается в удалении радионуклидов и радиоактивных микрочастиц с поверхности загрязненного объекта. В зависимости от агрегатного состояния РАО, образовавшихся после дезактивации, способы дезактивации можно разделить на жидкостные и сухие, основывающиеся на физико-механических, химических или физико-химических процессах.

К жидкостным способам относится дезактивация с применением воды, дезактивирующих растворов, реагентов, пен и т.д. Использование расходных материалов и образования ЖРО являются основными недостатками жидкостного метода дезактивации, поэтому предпочтительны сухие способы дезактивации. К сухим способам относятся: дезактивация струей газа, абразивный обдув, вакуумирование [36], удаление загрязненного слоя термической обработкой [37]. Также, известны следующие методы обработки поверхностей: химическое травление, лазерный пробой, ионно-плазменная обработка. Для плазменного травления можно использовать тлеющий и факельный разряд [38]. Подробный обзор способов дезактивации приведен в монографии [39].

Характер загрязнения зависит от применяемого в технологическом процессе продукта и его гранулометрического состава [25]. Поэтому производство топлива для АЭС сопровождается образованием загрязнения, связанного с поверхностью

адгезионными силами, которое можно отнести к нефиксируемому (снимаемому) загрязнению [40]. При проведении технологических операций герметизации (сварки) твэла, радиоактивные вещества внедряются в сварочный шов металла, поэтому загрязнение фиксированное (неснимаемое).

Удаление нефиксированного загрязнения, сводится к преодолению сил адгезии и удалению частиц с поверхности металла. При использовании физико-механических процессов, радиоактивные частицы удаляются вместе с материалом подложки, что приводит к большим потерям материала и увеличению объема твердых радиоактивных отходов. Химические методы очистки материалов основываются на удалении радиоактивных частиц в зоне обработки материала химическим реагентом с помощью растворения, травления, обезжиривания и др.

Комбинирование различных методов дезактивации в зависимости от характера загрязнения, позволяет наиболее эффективно удалять все виды радиоактивных загрязнений. Например, электролитические процессы при химической дезактивации, позволяют увеличить интенсивность процесса и коэффициент дезактивации, уменьшить расход реагентов [41].

Использование ультразвуковых колебаний в жидкости при дезактивации, создает неоднородное поле с разрывами сплошности среды, которое сопровождается появлением кавитации и переменного давления жидкости. Процессы кавитации оказывают воздействие на матрицу, химические реагенты и радиоактивные частицы, усиливая процесс дезактивации. Поэтому применение ультразвука при химической и электрохимической дезактивации целесообразно для интенсификации процесса [42].

Лазерное излучение обладает рядом уникальных свойств, которые позволяют создать высокоэнергетический источник энергии, поэтому может использоваться для дезактивации внешних поверхностей [43, 44]. Благодаря наличию у веществ различных теплофизических и оптических свойств, лазерное излучение используется в атомной отрасли для дезактивации загрязненных объектов [45]. Качество дезактивации зависит от многих параметров лазерного луча: рабочая длина волны, время воздействия, интенсивность, угол падения, угол

фокусировки. В зависимости от вида объекта дезактивации и находящихся на нем радионуклидов, требуются соответствующие параметры лазерного излучения.

1.4.1 Методы удаления поверхностного радиоактивного загрязнения с трубки твэла

Возможна ручная (механическая) дезактивация поверхности трубки твэла тканью, не оставляющей следов протирки и ворса, например протирка мадаполамом (ГОСТ 29298-2005), смоченным в спирте и отжатым. Метод ручной дезактивации твэла имеет низкую производительность и не позволяет удалять фиксированное загрязнение. При проведении ручной дезактивации повышается дозовая нагрузка на персонал, возможно повреждение поверхности трубки твэла путем нанесения недопустимых дефектов.

Известны способы автоматизации тканевой протирки твэлов, путем использования двух катушек и обтирочной ленты, через которую протягивают твэл, для удаления радиоактивных частиц [46]. Аналогично сухой дезактивации, тканевая лента неэффективно удаляет сильные загрязнения.

В промышленной эксплуатации применяется автоматизированная технология дезактивации поверхности твэла, которая предусматривает протирку его поверхности через тканевые чистящие элементы картриджа. При этом картридж после использования представляет из себя РАО и выводится из технологической цепочки [47]. Картридж не обеспечивает удаление фиксированных в сварном шве заглушки твэла дисперсных частиц. Микрочастицы топлива могут быть полностью, либо частично утоплены в сварной шов верхней заглушки твэла, имеющий сложную сферическую форму. Поэтому область сварного шва твэла является наиболее проблемным местом для дезактивации плоской поверхностью картриджа. Механическая протирка сварного шва картриджем с растворителем не приводит к уменьшению активности.

На заводе по производству мокси-топлива MELOX во Франции апробирован

химический метод, основанный на действии ионов Ag^{2+} на PuO_2 путем окисления четырехвалентного плутония, присутствующего в оксиде, в ионы PuO^+ и PuO^{2+} . Процесс дезактивации проходит с растворением загрязняющих поверхность частиц топлива в соляной кислоте, с последующей регенерацией Ag^{2+} [48]. Использование дорогостоящих реактивов и образование ЖРО, являются недостатком данного метода дезактивации твэлов.

В центре атомных исследований им. Бхабхи (BARC) в Индии исследуются несколько методов дезактивации поверхности твэлов. Один из них основан на дезактивации с применением ультразвуковых волн [49]. Для дезактивации твэлов используется ванна с дистиллированной водой. Под днищем ванны располагаются 40 пьезоэлектрических преобразователей мощностью 50 Вт с резонансной частотой 38 кГц. Установка обеспечивает эффективность дезактивации до 99% одновременно 25 твэлов, при температуре дистиллята 45°C в течении 30 минут. Из недостатков системы, авторы отмечают образование ЖРО и необходимость в регулярной фильтрации или замене дистиллята.

В опытной эксплуатации ФГУП «ПО «МАЯК» находится установка дезактивации внешней поверхности твэл с применением электрохимического и ультразвукового воздействия [50]. Установка проходного типа и может встраиваться в автоматическую линию изготовления твэлов. Состоит из двух ванн и вспомогательного оборудования. В первой ванне происходит электрохимическая дезактивация твэла с использованием раствора 5% HNO_3 . Ультразвуковой блок ванны мощностью 300 Вт и частотой 22 кГц интенсифицирует процесс. Во второй ванне происходит ополаскивание твэла дистиллятом с использованием ультразвукового блока, на выходе из ванны твэл осушается. Совокупность химического, электролитического и ультразвукового воздействия на твэл, позволяет повысить эффективность дезактивации поверхности трубки твэла. Из недостатков данной системы стоит отметить, как уже упоминалось выше, при использовании химического метода, образование ЖРО. Также, интенсификация процесса дезактивации нагревом растворов ванн требует повышенных энергетических затрат.

Совместно с ультразвуковой дезактивацией в ВАРС исследуется лазерная дезактивация твэлов [51]. В работе использовался Nd:YAG лазер (длина волны 1064 нм), с импульсами длительностью 6 нс. Поверхность трубки твэла очищалась от нефиксированного загрязнения. Использование примерно 8 импульсов лазерного излучения плотностью энергии 700 мДж/см^2 не приводило к существенному изменению поверхности трубки твэла в результате абляции. Коэффициент дезактивации поверхности трубки составил $\sim 10^4$.

1.4.2 Лазерная очистки от поверхностного загрязнения металлов дисперсными частицами

По мере развития лазерных технологий, всё больше возникало идей об использовании лазерного излучения в атомной промышленности. В отчете [52] 1985 года проводятся исследования по применению непрерывного лазерного излучения CO_2 -лазера, мощностью 9 кВт, для разделки ОЯТ быстрых реакторов. Лазерная резка ОЯТ обладает рядом преимуществ: процесс лазерной резки не оказывает механической силы на ТВС, минимальное удаление металла и ОЯТ испарившегося или потерянного в виде шлака, из-за мелких пропилов лазером, автоматизированный процесс лазерной резки, отсутствие необходимости в режущем инструменте. Также в отчете рассматривается возможность лазерной резки и сварки других конструкционных деталей ЯТЦ.

Французские научно-исследовательские организации, провели опыты с Nd:YAG лазером. В патенте [53] излучение Nd:YAG лазера используется для дезактивации парогенераторов АЭС. Процесс дезактивации необходим, например, при ремонте парогенератора и может сопровождаться без опорожнения сосуда. В этом случае доставка импульсного лазерного излучения плотностью энергии от 1 до $4,5 \text{ Дж/см}^2$ и длительностью от 10 до 30 нс осуществляется по оптоволокну. В патенте [54] излучение Nd:YAG лазера длительностью 7 нс и интенсивностью 150 МВт/см^2 используется для обеспыливания топливной таблетки твэл.

В патенте [55] описан способ лазерной дезактивации поверхности профилированной детали импульсным лазерным излучением с длиной волны в ультрафиолетовой области в термомеханическом и фотохимическом режиме. Радиоактивные продукты абляции оседают на фильтре устройства, за счет пониженного давления в камере дезактивации.

Коллектив ученых из Франции рассматривает использование эксимерного ХеСl лазера с доставкой излучения по оптическому волокну для дезактивации внешних поверхностей [56, 57, 58]. В указанных статьях рассмотрены физические процессы, протекающие во время ультрафиолетовой (УФ) лазерной абляции, влияние длины волны на дезактивацию. Результаты исследования показывают, что возможно обеспечить эффективную очистку поверхности, при доставке излучения с длиной волны 308 нм по оптическому волокну, с минимальным повреждением очищаемой поверхности. В зависимости от типа загрязнения, скорость очистки составляет от 2 до 6 м² в час.

Известен метод и устройство для дезактивации поверхности стен на объектах ЯТЦ. В устройстве предпочтительно использовать волоконный лазер. В зависимости от типа дезактивируемой поверхности, предлагаются следующие параметры: длительность импульсов от 20 нс до 500 мкс с энергией импульса от 0,1 мДж до 10 мДж, диаметр луча от 10 мкм до 500 мкм [59].

Известны результаты успешной дезактивации молниеотводов, содержащих на своей поверхности ²⁴¹Am, произведенные в Бразилии в период с 1970-1980 годов. В зависимости от степени загрязнения, лазерным импульсом энергией 300 мДж, длительностью 5 нс Nd:YAG лазера, эффективность дезактивации молниеотвода достигает 98% [60].

В работе [61] приведены результаты исследования влияния лазерной дезактивации на шероховатость поверхности. Проводилась очистка металлических поверхностей с загрязнением из ⁶⁰С воздействием излучения волоконного лазера с активным элементом на неодиме, импульсами длительностью 1,5 мс и с длиной волны 1,06 мкм. Диаметр фокального пятна составлял 24 мкм. При таких параметрах лазерного излучения для латуни

коэффициент дезактивации максимален, при этом шероховатость поверхности уменьшается. Однако, при дезактивации поверхности из алюминия, наблюдается значительное увеличение шероховатости, а активность уменьшается до двух раз.

В статье [26] приведены результаты исследования дезактивации радиоактивно-загрязненных поверхностей с использованием Nd:YAG лазера в режиме наносекундных импульсов (10 нс). Показано, что при наклонном падении луча на обрабатываемую поверхность, возможно улавливать продукты дезактивации на сорбирующую пленку. Также для дезактивации узлов и агрегатов утилизируемых атомных подводных лодок авторами разработан мобильный комплекс на базе CO₂ лазера.

В работе [62] приведены результаты исследования лазерной дезактивации уранил нитрата и диоксида урана с поверхности нержавеющей стали с помощью Nd:YAG лазера частотой 10 Гц, длительностью импульса 7-10 нс и энергией импульса 0,8 Дж. Частицы имели размер до 1 мкм и во время дезактивации удалялись в вытяжную вентиляцию. Большая часть загрязнения удаляется при плотности энергии менее 0,4 Дж/см² и не приводит к повреждению подложки.

При дезактивации лазерное излучение возможно использовать для интенсификации процессов химической дезактивации [63]. При лазерном облучении металла в атмосфере газообразного хлора, продукт коррозии реагирует с радикалом хлора и образует хлорид металла. В результате продукты коррозии легко удаляются. Индуцирование химических реакций при дезактивации инфракрасным лазерным излучением возможно в дезактивирующих гелях и растворах кислот. Показана возможность дезактивации поверхности бетона глубиной до 14 мм с использованием мощного (2 кВт) Nd:YAG лазера в режимах скальвания и остекловывания.

При удалении частиц диоксида урана и диоксида тория с нержавеющей стали с помощью импульсного CO₂ лазера показано, что пороговое значение для удаления микрочастиц UO₂ оказалось ниже, чем для удаления микрочастиц ThO₂ [64]. Частицы UO₂ поглощают до 90% падающего излучения с длиной волны 10,6 мкм, поэтому при облучении лазерным импульсом с плотностью энергии

0,75 Дж/см², происходит их удаление за счет теплового расширения и преодоления сил Ван-дер-Ваальса.

Таким образом, очистка поверхности с использованием лазерной дезактивации возможна за счет термомеханического взаимодействия радиоактивной частицы с поверхностью металла, при преодолении силы адгезии силами теплового расширения. Резкое тепловое расширение подложки приводит к возникновению инерционных сил, в результате которых частица отрывается с поверхности подложки. Адгезия микрочастиц микронного и субмикронного диапазона размеров, происходит за счет сил Ван-дер-Ваальса (возможно донорно-акцепторная, ионная), а при наличии между частицей и субстратом жидкости, за счет капиллярных сил.

При энергии выше определённой пороговой для каждого радионуклида, достигается температура кипения, и частица удаляется за счет испарительного переноса. В зависимости от совокупности характеристик лазерного пучка, возможно добиться селективного испарения необходимых частиц.

1.4.2.1 Выбор источника лазерного излучения для очистки поверхности

В настоящее время в промышленности широко распространены газовые СО₂ лазеры с рабочей длиной волны 10,6 мкм и твердотельные лазеры с активным элементом содержащим Nd или Yb, а также газовые и эксимерные лазеры, работающие в ультрафиолетовой области ($\lambda \sim 0,2-0,38$ мкм).

Выбор параметров лазерного излучения (длины волны, времени облучения, частоты импульсов, интенсивности) зависит от совокупности теплофизических, оптических, электрических и других характеристик обрабатываемого материала. Дезактивацию металлической поверхности от частиц радиоактивных оксидов, возможно проводить за счет разницы теплопроводности, теплоемкости и комплексного показателя преломления металлов и оксидов.

Для каждого материала существует пороговая плотность энергии, в результате которой возникает оптический пробой и образование

приповерхностной плазмы, из-за различий теплофизических и оптических свойств. Плотность энергии лазерного излучения влияет на коэффициент дезактивации, который с увеличением интенсивности имеет сначала нарастающий характер и по достижению определенной плотности, обеспечивающей возникновение оптического пробоя – убывающий. Оптический пробой уменьшает перенос энергии от лазерного луча в подложку, из-за поглощения излучения в приповерхностной плазме. Уменьшение времени лазерного импульса снижает вероятность образования пробоя и долю поглотившейся энергии в приповерхностной плазме. От длительности импульса зависит и глубина прогрева матрицы, которая приблизительно пропорциональна \sqrt{t} , где t – время воздействия лазерного излучения (длительность импульса). Поэтому предпочтительно импульсное наносекундное лазерное облучение.

Оптические свойства материала влияют на его способность поглощать излучение с определенной длиной волны. Коэффициент отражения электромагнитного излучения далее среднего инфракрасного (ИК) диапазона достаточно высок у металлов из-за наличия свободных электронов. Температура на поверхности металлической подложки уменьшается с увеличением длины волны падающего на нее излучения, из-за уменьшения поглощающей способности металла. Коэффициент поглощения коротковолнового оптического излучения металлами также небольшой, ввиду отражения значительной части излучения в приповерхностном слое металла на глубине порядка $\lambda/3$, что не позволяет передать основную часть энергии свободным электронам.

Нагрев полупроводников и неметаллов, за счет поглощения энергии лазерного излучения, отличается из-за отсутствия в них электронов проводимости. На сегодняшний день строгого определения для полупроводников не существует [65, 66]. С точки зрения зонной теории, вещества с шириной запрещенной зоны более 3 эВ являются диэлектриками. Поэтому, ввиду особенности механизма передачи энергии лазерного излучения в материалах с полупроводниковыми свойствами, а также известного гранулометрического состава микрочастиц, используемых в процессе производства уран-плутониевого

топлива, под полупроводниковыми микрочастицами будем понимать частицы UO_2 , PuO_2 и CeO_2 с размером, не превышающим 10 мкм ($D_{50} = 2,0$ мкм). Ширина запрещенной зоны (E_g) для каждого оксида приведена в таблице 3.1.

В материалах с полупроводниковыми свойствами и неметаллах, энергия лазерного излучения передается за счет колебаний возбужденных атомов и молекул вещества. Фотоны коротковолнового лазерного излучения обладают достаточно высокой энергией, которая позволяет переводить систему из основного состояния в возбужденное. Поэтому при поглощении УФ излучения веществом, происходит электронное возбуждение вещества и разрыв связей в молекулах. В связи с небольшой глубиной прогрева матрицы УФ излучения и использовании коротких лазерных импульсов, тепловая модель удаления вещества сменяется на фотофизическую. Такой режим удаления частиц радиоактивных оксидов носит характер «холодной» абляции. Поэтому для обработки металлов предпочтительны твердотельные лазеры работающие на длине волны ближнего ИК-диапазона. Для обработки оксидов предпочтительно лазерное излучение в ультрафиолетовом или в среднем ИК-диапазоне.

Поскольку энергия фотона неодимового лазера ($E=1,17$ эВ) меньше чем ширина запрещенной зоны UO_2 ($E=2,1$ эВ) [67], диоксид урана является прозрачным к данному типу излучения. При облучении лазерным излучением прозрачной частицы, большая часть энергии импульса поглощается подложкой. Поэтому маловероятно удаление прозрачной лазерному излучению частицы в термомеханическом режиме за счет её резкого расширения. Однако частица на поверхности создает неоднородную интенсивность распространения лазерного излучения в её окрестности из-за рассеяния и дифракции. Показано, что маленькая прозрачная лазерному излучению частица может работать как линза [68]. Также, прозрачные излучению с длиной волны 1064 нм частицы увеличивают плотность потока излучения, за счет многократных переотражений, что приводит к возникновению большей инерционной силы, приводящей к увеличению эффективности дезактивации [69, 70]. Излучение с длиной волны 1064 нм наиболее эффективно при начальном воздействии на диэлектрические

загрязнения металлических поверхностей. С увеличением числа облучений, уменьшение длины волны играет важную роль в дезактивации поверхности. Поэтому наилучший эффект дезактивации снимаемого загрязнения достигается при использовании импульсов Nd:YAG лазера с длиной волны 1,06 мкм. Использование УФ и CO₂ лазеров оптимально для дезактивации фиксируемого загрязнения поверхности.

1.4.2.2 Физико-химические процессы, протекающие при лазерном воздействии на поверхность металлов

Радиоактивная частица на поверхности может удерживаться силами адгезии, различающимися по механизму в зависимости от окружающих условий и воздействий. При попадании частицы на поверхность, она удерживается за счет сил Ван-дер-Ваальса, капиллярных сил, электростатических сил. Сила Ван-дер-Ваальса на сухих твердых поверхностях обычно является преобладающей для адгезии частицы и подложки [71]. Такое загрязнение в основном нефиксированное (снимаемое), и удаляется с силой превышающей силу адгезии. При лазерной очистке микрочастиц с твердой поверхности, сила адгезии между частицами и поверхностью подложки, а также тепловое расширение частиц и субстрата, играют важную роль в определении необходимой минимальной интенсивности лазерного излучения.

Силы Ван-дер-Ваальса вызывают прилипание радиоактивных микрочастиц к поверхности металла, за счет коллективных эффектов взаимодействия диполей [72]. Эта сила взаимодействия преобладает для частиц размером менее нескольких микрон [73].

Из-за высокой влажности или из-за того, что система прилипшая частица-поверхность была погружена, а затем извлечена из жидкости, может образовываться жидкая пленка между частицей и поверхностью. При наличии тонкого слоя смачивающей жидкости, в месте контакта частиц возникает капиллярная стягивающая сила, значение которой зависит от количества

жидкости в зазоре между частицами (мениске). Результирующая капиллярная сила является функцией радиуса частицы и поверхностного натяжения жидкости.

Возникновение электростатического взаимодействия между частицей и поверхностью объекта возникает за счет касания частицей подложки, что вызывает перераспределение электрических зарядов в системе. В работе [74] рассмотрены два механизма адгезии частицы к поверхности за счет электростатических сил. Первый связан с объемными избыточными зарядами, присутствующими на поверхности и частицах, которые производят классическое кулоновское притяжение, известное как электростатическая сила, которая зависит от зарядов частицы и подложки, диэлектрической проницаемости свободного пространства и расстояние между центрами заряда соответственно. Вторым механизмом адгезии за счет электростатических сил для мелких частиц являются силы двойного электрического слоя (ДЭС). Силы ДЭС индуцируются образованием потенциала, при контакте двух разных частиц с различным энергетическим состоянием в локальных областях. Электроны переносятся из одного материала в другой, пока не достигнут равновесной концентрации с одинаковым током в обоих направлениях. Разность потенциалов частиц обычно находится в диапазоне от 0 до $\sim 0,5$ В.

Удержание частицы на поверхности возможно за счет её включения в материал подложки механическим воздействием при различных режимах нагружения [75]. Интенсивное внедрение и надежное закрепление частиц оксидов актиноидов в материале образца возможно в случае, когда используется режим нагружения, при котором происходит образование на поверхности коротких тупиковых царапин. Например, попадание и удержание радиоактивных частиц в царапине возможно при взаимодействии изношенных частей технологического оборудования с пластичным металлом изделия. Также при проведении операций сварки, пайки, плакировки и нанесения различных покрытий, радиоактивная частица попадает в обрабатываемую зону. Поэтому такие частицы могут полностью или частично скрываться в обрабатываемом слое и носить фиксированный характер поверхностного загрязнения.

Термомеханический способ удаления частицы с поверхности материала лазерным излучением сводится к преодолению сил адгезии, которые зависят от диаметра частицы обратно пропорционально. Вызывающее при лазерном нагревании частицы и подложки быстрое расширение материалов, приводит к возникновению инерционной силы, которая отрывает и уносит частицу в направлении заднего фронта импульса. В работе [76] исследовано влияние длины волны лазерного излучения на инерционное удаление частиц меди и алюминия с поверхности кварца. Кварцевая подложка выбрана для поглощения лазерного излучения преимущественно частицами меди и алюминия. Использовался Nd:YAG лазер в режиме модуляции добротности с преобразованием четвертой гармоники. В результате формируется пучок содержащий излучение на четырех длинах волн. Экспериментально показано, что эффективность очистки повышается при увеличении интенсивности и уменьшении длительности импульса лазерного излучения. С уменьшением длины волны лазерного излучения, эффективность очистки инерционными силами уменьшается.

При повышении интенсивности лазерного облучения, возможно появление лазерно-индуцированной ударной волны в результате образования избыточного давления в границе раздела частицы и подложки. Вынос частицы в таком случае имеет взрывной характер [77]. Термомеханический режим дезактивации позволяет эффективно удалять нефиксированное (снимаемое) радиоактивное загрязнение, без повреждения подложки.

При достижении мощности лазерного облучения порогового значения для испарения частиц, происходит их удаление с поверхности в результате лазерной абляции. В этом случае термомеханическое воздействие сменяется на испарительное, оказывая более интенсивное термическое воздействие на материал подложки. Испарительный режим дезактивации позволяет эффективно удалять фиксированное (неснимаемое) радиоактивное загрязнение. В работе [78] исследуется изменение поверхности монокристаллов Si и Ge, при воздействии излучением лазера на парах меди с длиной волны 510,6 нм, частотой 10 кГц, длительностью импульса 20 нс. Воздействие лазерного излучения плотностью

энергии от 1 до 2 Дж/см², превышающей порог плавления материалов, приводит к изменению поверхности и формированием конических выступов высотой 20-30 мкм. При использовании пороговых режимов лазерного излучения в испарительном режиме для удаления фиксированного загрязнения с поверхности металла становится возможным добиться очистки поверхности с минимальным изменением шероховатости. Поэтому удаление фиксированных частиц с поверхности металла лазерным излучением является одним из основных достоинств данного метода.

Лазерная очистка поверхности в термомеханическом и испарительном режиме сопровождается выносом продуктов абляции навстречу лазерному лучу. Высокоинтенсивное лазерное излучение с импульсами наносекундного диапазона и менее способно испарять вещество, минуя стадию плавления. Поэтому в облаке, образующемся при абляции, присутствуют пары металлов и их оксидов. Совокупность различных физико-химических процессов при формировании парогазового облака, определяет состав облака в виде смеси паров тяжелых и легких молекул, частиц различного гранулометрического состава [79].

Расширение парогазового облака приобретает трехмерный характер, при увеличении парового слоя более размера фокального пятна и зависит от режимов воздействия лазерного излучения. Расширение облака абляции сопровождается снижением температуры его продуктов и переходом к конденсации пара с формированием нанокластеров [80]. Скорость охлаждения пара в парогазовом облаке достигает $10^{10} - 10^{11} \text{ K}\cdot\text{c}^{-1}$. Поэтому процессы быстрых фазовых переходов еще не полностью изучены. В работах [81, 82, 83] исследуется распределение нанокластеров кремния, германия и углерода. Показано, что размеры нанокластеров зависят от режимов абляции, в том числе от плотности энергии в импульсе, и распределяются в диапазоне от 1 до 8 нм. Большая концентрация наночастиц в парогазовом облаке приводит к ослаблению лазерного излучения связанного с Рэлеевским рассеянием.

1.5 Распространение интенсивного лазерного излучения через атмосферный аэрозоль или парогазовое облако при лазерном пробое

Основные потери лазерного излучения по трассе распространения происходят на аэрозолях, молекулах и атомах, в зависимости от режима лазерного облучения. При прохождении через газовую среду лазерное излучение может рассеиваться, отражаться и поглощаться, что неизбежно приводит к ослаблению интенсивности (экстинкции) и искажению структуры по сечению луча [84].

Экстинкция зависит от длины волны излучения и состава среды. Лазерное излучение в атмосфере взаимодействует, в основном, с водяными парами, а также с оксидами азота и серы. Пропускание и поглощение излучения различных длин волн представлено на рисунке 1.1.

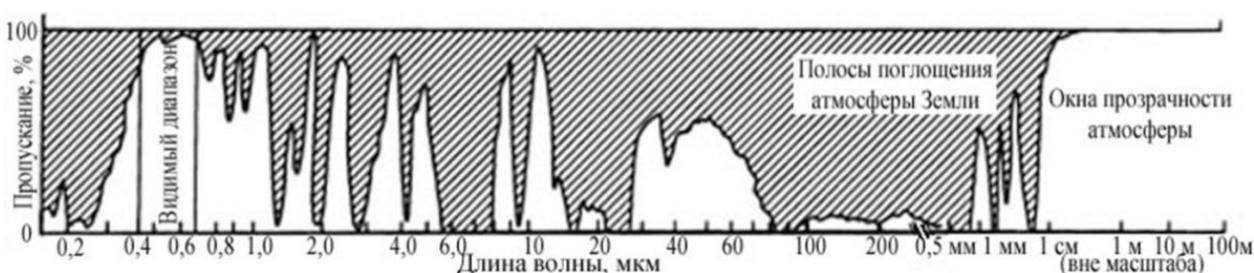


Рисунок 1.1 – Окна прозрачности в атмосфере

Газы имеют характерные для них спектральные линии поглощения. При рассмотрении лазерного излучения, причиной ослабления могут стать газы, содержащиеся в атмосфере в небольшом количестве, имеющие узкие, но интенсивные линии поглощения. Так, для гелий-неонового лазера на длине волны 3,39 мкм сильное поглощение вызывается метаном. Присутствие углекислого газа в атмосфере, вызывает поглощение волны 10,6 мкм CO_2 лазера. Кислородом и озоном поглощается почти вся ультрафиолетовая область [85].

Взаимодействие лазерного излучения с дисперсными частицами в воздухе может приводить к образованию оптического пробоя. Плазменный очаг оптического пробоя частично или полностью перекрывает распространение лазерного луча. При этом уменьшается эффективность лазерного воздействия на мишень.

Известны способы интенсификации процесса образования очагов пробоя в атмосфере, путем искусственного запыления трассы лазерного луча, например порошком Al_2O_3 с размером частиц до 1 мкм. При этом механизм воздействия лазерного излучения с веществом различается в зависимости от длины волны излучения. Взаимодействие излучения неодимового лазера с частицей Al_2O_3 приводит к ее испарению на всем протяжении трассы. Ультрафиолетовое лазерное излучение, обладая высокоэнергичными квантами, способно образовывать свободные электроны в процессе ступенчатой двух квантовой ионизации молекул кислорода O_2 , что делает процесс ионизации стабильным и менее энергозатратным.

Возникновение в результате фотоионизации затравочных электронов в поле лазерного луча, приводит к лавинообразному возрастанию свободных электронов и, при плотностях свободных электронов выше некоторой пороговой, возникновению оптического пробоя. Такой эффект, в основном, возможен при интенсивности лазерного излучения более 100 МВт/см^2 .

Образование очагов оптического пробоя и плазмы на трассе следования излучения, влияет на прохождение лазерного луча и вызывает изменение микрофизических и электрических параметров атмосферы [86, 87]. Однако, свойства лазерного луча меняются не только по пути следования к цели, но и в результате взаимодействия с целью, за счет образования приповерхностной плазмы, продуктов абляции, парогазового облака, взвешенных наночастиц и аэрозолей. Возможно управление физическими процессами лазерного взаимодействия, для оптимизации лазерной обработки и достижения требуемых физико-химических показателей. Например, возникновение аэрозолей в облака от абляции, способствует увеличению рассеяния лазерного излучения и уменьшению его интенсивности.

В статье [88] приведены результаты исследования распространения аэрозольных частиц лазерной абляции с визуализацией кадров в ближнем инфракрасном диапазоне. Показаны стадии распространения аэрозолей в облаке, возникающего при лазерной абляции нано- и фемтосекундными импульсами, в

зависимости от положения фокальной плоскости на мишени в атмосфере аргона и гелия. Установлено, что время формирования и распространения аэрозолей в облаке от абляции зависит от типа облучаемой мишени и может занимать несколько десятков микросекунд.

В статьях [89, 90] рассматриваются методы лазерной очистки, основанные на изменении угла падения Nd: YAG лазерного излучения в режиме модуляции добротности. Показано, что, управляя углом падения лазерного луча, можно значительно повысить эффективность очистки, снижая степень взаимодействия на подложку и ее повреждения. При нормальном падении лазерного излучения, степень воздействия на поверхность максимальна. Наилучший эффект удаления загрязнений наблюдается при падении лазерного излучения на подложку под углом. При этом увеличивается площадь обрабатываемой поверхности, а интенсивность лазерного излучения падает.

В работе [62] упомянутой ранее, рассмотрено смещение абляционного шлейфа при дезактивации поверхности. Показано, что при угловом падении лазерного луча и удалении радиоактивных частиц в вытяжную вентиляцию с производительностью 2800 литров в минуту, продукты абляции не попадают в область трассы лазерного импульса.

В статье [91] исследованы фундаментальные аспекты изменения структуры продуктов абляции, с акцентом на образование кластеров и аэрозолей при столкновении шлейфов абляции. Показано, что при столкновении абляционных шлейфов, возможно изменять наноструктуры материалов при конденсации паров абляции. В качестве материалов подложки использовались Al, Cu и C.

Анализ проведенных исследований показывает, что для достижения необходимых результатов взаимодействия лазерного излучения с веществом, получения требуемых физико-химических свойств продуктов лазерной абляции, требуется непрерывный контроль процесса лазерного взаимодействия. Управление вторичными эффектами лазерной абляции может способствовать изменению свойств продуктов абляции и увеличению энергоэффективности процесса испарения.

1.6 Выводы по главе 1

1. Рассмотрены особенности переработки ОЯТ и производства уран-плутониевого топлива. Вовлечение продуктов ОЯТ в топливо требует применение дополнительных технологических операций с высокой степенью автоматизации, а также использование дополнительных методов радиационного контроля продукции и персонала.

2. Использование в ЯТЦ плутония, америция и других высокоактивных альфа-активных изотопов, делает актуальной задачу автоматизации контроля поверхностного альфа-загрязнения и требует разработки принципиально новых методов дезактивации.

3. Очистка поверхности от радиоактивных микрочастиц возможна при воздействии лазерным излучением с параметрами, которые зависят от совокупности теплофизических, оптических и других характеристик обрабатываемого материала.

4. Оптимизация параметров лазерной абляции возможна за счет непрерывного контроля вторичных эффектов лазерного взаимодействия с веществом. Управление процессами лазерной абляции на различных стадиях повышает эффективность процесса, позволяет задавать требуемые свойства материалу.

ГЛАВА 2. РАЗРАБОТКА АВТОМАТИЗИРОВАННОГО МЕТОДА КОНТРОЛЯ АЛЬФА-ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОВЕРХНОСТИ ТВЭЛОВ ДЛЯ УРАН-ПЛУТОНИЕВОГО ТОПЛИВА

Процесс производства уран-плутониевого топлива сопровождается появлением альфа-загрязнения поверхностей, вызванного наличием микрочастиц топлива и пылинок UO_2 и PuO_2 в воздухе. Глава посвящена методам контроля альфа-загрязнения до и после лазерной дезактивации поверхностей трубки твэлов, а также методам увеличения эффективности регистрации альфа-загрязнения поверхности в условиях ужесточения требований для существующих и новых проектов уран-плутониевого топлива. Проведен анализ существующих методов контроля альфа-загрязнения твэлов, оптимизирован процесс контроля снимаемого альфа-загрязнения поверхности твэлов. Разработан метод автоматизированного контроля общего альфа-загрязнения поверхности твэла с уран-плутониевым топливом, эффективность которого увеличивается за счет поддержания среды с максимальным пробегом альфа-частицы в камере. Результаты исследований опубликованы в статье [92] и обсуждались на конференциях [93, 94, 95].

2.1 Контроль радиоактивного загрязнения в промышленных условиях

Развитие безопасных ядерных технологий достигается путем международного сотрудничества разных стран [96]. Российская атомная энергетика имеет полный спектр ядерных технологий и успешно реализует проекты по замыканию ЯТЦ с использованием различных технических и технологических решений [97].

Безопасность в атомной энергетике является приоритетной задачей и достигается комплексным путем, в том числе ведением непрерывного контроля за ядерной и радиационной обстановкой с помощью стационарных систем радиационного мониторинга [98, 99, 100]. Контроль радиоактивного загрязнения является необходимой операцией по выпуску продукции на предприятиях ядерного топливного цикла. Например, контролируется поверхностное

альфа-загрязнения при изготовлении твэлов с таблеточным топливом из диоксида урана [101]. Такое загрязнение возникает также при утилизации радиоактивных отходов [102]. Жизнедеятельность предприятий ЯТЦ может сопровождаться образованием радиоактивного загрязнения и отходов различного агрегатного состояния и активности [35, 103]. В зависимости от используемых ядерных материалов и технологии на производстве, применяются соответствующие методы контроля ионизирующего излучения, с использованием носимых и стационарных средств измерения. Стационарные средства радиационного контроля ограничены функциональными возможностями и связаны в основном с измерением гамма и нейтронного излучения, имеющего большой радиус распространения. Носимые средства радиометрического контроля регистрируют основные виды радиоактивного загрязнения, но требуют работы дозиметриста в зоне повышенного ионизирующего излучения. Использование в замкнутом ЯТЦ продуктов переработки ОЯТ (плутоний, минорные актиноиды) накладывает жесткие требования к технологическому оборудованию, состоянию радиационной обстановки, квалификации персонала. Поэтому при изготовлении твэлов с использованием мокс-топлива, контролю поверхностного альфа-загрязнения подвергается каждый твэл. Повышенный уровень загрязнения твэлов, приводит к загрязнению ТВС, которые транспортируются на АЭС. Также контролируется поверхностное загрязнение готовой продукции и технологического оборудования.

В результате приварки верхней заглушки трубки с таблеточным топливом, завершается стадия герметизации твэла. Герметичная оболочка твэла исключает выход ядерного топлива и продуктов деления за ее пределы, поэтому является одним из основных барьеров безопасности. Однако, после герметизации твэла, на его поверхности могут находиться микрочастицы ядерного топлива. Для исключения распространения радиоактивного загрязнения по технологической линии изготовления твэлов и оборудованию участка, снижения дозовой нагрузки на персонал, проводится дезактивация внешней поверхности твэла, с последующим контролем альфа-загрязненности. В случае неудовлетворительных результатов альфа-контроля, твэл повторно дезактивируется, либо бракуется.

После цикла дезактивации, проводится контроль снимаемого альфа-загрязнения твэла. Измерение снимаемого альфа-загрязнения заключается в удалении слабоудерживаемых частиц топлива и пыли с поверхности твэла, с последующим измерением их активности. При удовлетворительных результатах контроля снимаемого альфа-загрязнения, твэл передается далее по линии для контроля общего альфа-загрязнения. Общее альфа-загрязнения проводится методом прямого измерения активности на всей поверхности твэла.

2.2 Методика контроля альфа-загрязнения поверхности твэла

Используемые в технологическом процессе по производству мокс-топлива радионуклиды, излучают преимущественно альфа-частицы, например ^{239}Pu и ^{241}Am . Поэтому на поверхности твэла формируется общее альфа-загрязнение, которое определяется суммой фиксированного и нефиксированного загрязнения. Измерение общей загрязненности поверхности твэла проводится путем регистрации собственного альфа-излучения радионуклидов топлива всей поверхности твэла с погрешностью не более 50% при доверительной вероятности 0,95 на уровне средней альфа-активности поверхности твэла (превышающей минимальное пороговое значение Q_0 альфа-частиц / (см²·мин)) и измерение средней суммарной альфа-активности по зонам. По ТУ принят размер одной зоны 60 мм вдоль оси твэла. Погрешность измерения средней суммарной альфа-активности каждой зоны не нормируется.

Контроль общего альфа-загрязнения осуществляется сцинтилляционными детекторами альфа-частиц. Для определения загрязнения по всей поверхности твэла используется две пары детекторов.

Загрязненность твэла Q (α-частиц / (см²·мин)) рассчитывается по выражению:

$$Q = \frac{N}{\eta}, \quad (2.1)$$

где $N = (N_{изм} - N_{ф})$ – число импульсов от зарегистрированных альфа-частиц радионуклидов с контролируемого твэла за вычетом фона

$(N_{12} - N_{\phi 2} + N_{22} - N_{\phi 2})$, размерность (имп / (см²·мин)); N_{12} - счет от первой пары детекторов; N_{22} - счет от второй пары детекторов; η [см²] - коэффициент, определяемый по результатам градуировки.

На рисунке 2.1 показана картина распределения общей загрязненности твэла, связанной с технологией производства топлива. В области механического взаимодействия топливных таблеток с торцом твэла наблюдается наибольшее загрязнение. Видна неравномерность распределения радиоактивного загрязнения. Наибольшее загрязнение наблюдается в зоне верхней заглушки и имеет пиковый характер. На остальной поверхности трубки твэла наблюдается монотонное распределение активности.

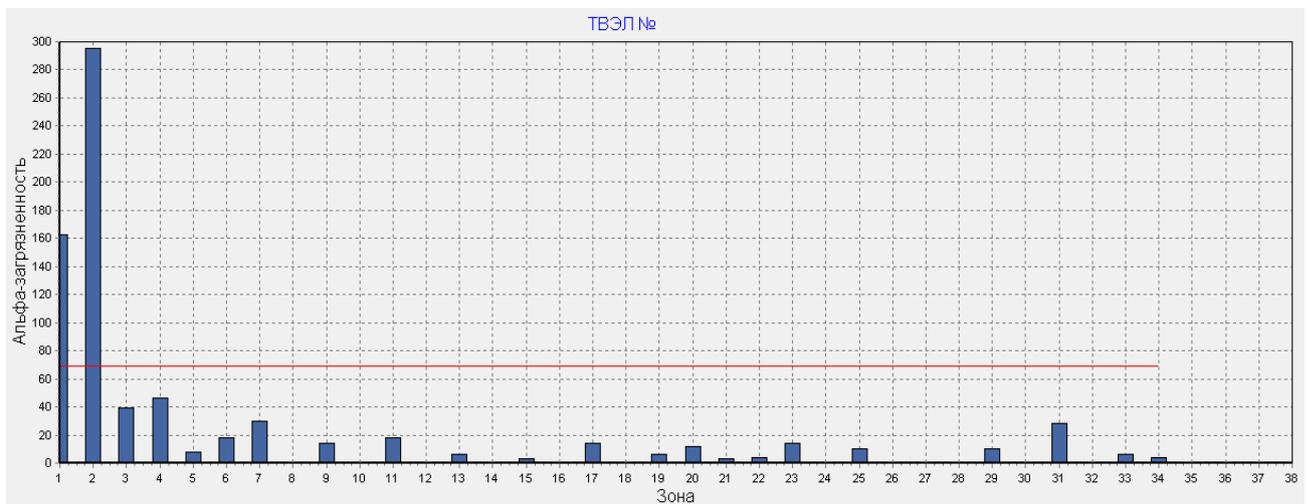


Рисунок 2.1 – Распределение активности по поверхности трубки твэла

Пробег альфа-частицы (при $E=4$ МэВ) в воздухе составляет около 2,5 см [104], что требует очень близкого расположения детектора к измеряемой поверхности. Также следует учитывать, что у существующих сцинтилляционных детекторов альфа-частиц до 30% альфа-частиц не взаимодействуют с поверхностью сцинтиллятора, так как поглощаются в защитной пленке, препятствующей попаданию света на сцинтиллятор и ФЭУ. Это требует увеличения времени экспонирования для набора достаточной статистики. При увеличении скорости прохождения твэла вдоль детектора, увеличивается погрешность в определении уровня загрязнения твэла, что может привести к

избыточной перебраковке продукции. В результате, создание установки автоматического контроля поверхностного альфа-загрязнения твэла, обеспечивающей необходимую производительность, затруднено.

2.3 Разработка автоматизированного метода контроля общего альфа-загрязнения поверхности твэла для перспективных требований

С развитием атомной отрасли и созданием новых производств, где в работе используются радионуклиды, излучающие преимущественно альфа-частицы [105, 106], работа стационарных установок радиометрического контроля становится малоэффективной. При стационарном расположении детектора создание установки для автоматического контроля наличия альфа-излучающего нуклида, например ^{239}Pu , затруднено. Это связано с тем, что стационарные блоки детектирования альфа-частиц могут не зарегистрировать радионуклиды, находящиеся в труднодоступных, для плоской поверхности детектора, местах. Например, область дистанционирующей проволоки и нижней заглушки твэла, характеризуется сложным рельефом поверхности, который препятствует прохождению альфа-частиц до поверхности детектора, либо больше пробега альфа-частицы в воздухе.

В условиях обеспечения перспективных требований существующих и новых проектов уран-плутониевого топлива, где требуется контроль загрязнения поверхностей со сложным рельефом или в труднодоступных местах, актуальны исследования по разработке стационарных автоматизированных установок для контроля наличия альфа-активного загрязнения поверхности, в том числе при дезактивации лазерным излучением.

Поиск газовой смеси при регистрации альфа-частиц. Для обоснования возможности создания автоматизированной системы контроля поверхностного загрязнения альфа-излучающими радионуклидами, собрана установка, в которой источник и детектор альфа-частиц, находится в едином герметичном боксе. Это позволяет контролировать состав газовой смеси, в которой распространяются

альфа-частицы. Источник альфа-частиц установлен на направляющей так, что с помощью внешнего магнитного манипулятора можно изменять расстояние от блока детектирования до источника альфа-частиц. Установка источника на направляющей позволяет экспериментально определять длину пробега α -частиц.

Пересчетный блок расположен за пределами герметичной камеры. Камера снабжена двумя штуцерами для смены газовой смеси. Использовался радиометр МКС-АТ1117М с выносным БД марки БДПА-01. Источник альфа-частиц выполнен в виде таблетки диаметром 30 мм и толщиной 4 мм. В качестве источника альфа-частиц был выбран ^{239}Pu активностью $A=3,4$ кБк, так как на предприятиях по производству твэлов именно этот изотоп вносит основной вклад в поверхностное загрязнение [107].

Активность ^{239}Pu связана с альфа-распадом с вероятностью, близкой к 100 % [108]. При этом испускаются альфа-частицы с энергией: 5 105,5 кэВ - 11,94 %; 5 144,3 кэВ - 17,11 %; 5 156,59 кэВ - 70,77 %. Также возможно спонтанное деление с вероятностью, не превышающей $3,2 \cdot 10^{-10}$ %. При альфа-распаде ^{239}Pu энергия альфа-частицы составляет около 5,1 МэВ. Длина пробега альфа-частиц в воздухе при 760 мм рт.ст. и температуре 15°C зависит от энергии альфа-частиц, соответственно от начальной скорости, и определяется по формуле:

$$L = K \cdot E_a^{3/2}. \quad (2.2)$$

Величина K зависит от единиц измерения и среды распространения [109]. Если энергия альфа-частиц (E_a) в МэВ, при температуре 15°C в воздухе величину пробега альфа-частицы можно определить по формуле:

$$L_g = 0,316 \cdot E_a^{3/2}. \quad (2.3)$$

Например, расчетная длина пробега в воздухе альфа-частиц с энергией 5,1 МэВ равна $L_g = 0,316 \cdot 5,1^{3/2} = 3,63$ см.

Величину пробега альфа-частиц в заданной среде можно определить по известной величине пробега в воздухе с точностью ± 15 % по формуле:

$$R = R_0 (\rho_0 : \rho) \sqrt{A : A_0}, \quad (2.4)$$

где L – пробег альфа-частицы в веществе; L_0 – пробег альфа-частицы в воздухе; ρ_0 и A_0 – плотность и атомная масса воздуха ($\rho_0 = 1,29$ г/л, средняя атомная масса принята равной 14,4 г/моль); ρ , A – плотность и атомный вес вещества.

Из этого соотношения видно, что пробег альфа-частицы будет максимален в газах, у которых минимальная плотность и максимальная атомная масса. Поэтому для увеличения пробега альфа-частиц и количества зарегистрированных импульсов от ^{239}Pu , необходимо создать в пространстве между детектором и контролируемой поверхностью атмосферу водорода или гелия. С учетом взрывоопасных свойств водорода при взаимодействии с кислородом, оптимально использование атмосферы гелия. В атмосфере гелия пробег альфа-частиц имеет максимальное значение.

Экспериментально определяли величину потока альфа-частиц на разных расстояниях от детектора и максимальное расстояние которое проходит альфа-частица в воздушной среде и смеси гелия с воздухом. Экспериментальные результаты приведены на рисунке 2.2. Видно, что минимальное расстояние, на котором удастся зарегистрировать альфа-частицы в воздушной среде, составляет 2,5 см. В атмосфере гелия пробег альфа-частиц не превышает 12 см [92]. Полученная величина пробега альфа-частиц позволяет формировать измерительный блок для автоматизированного комплекса контроля радиоактивного загрязнения.

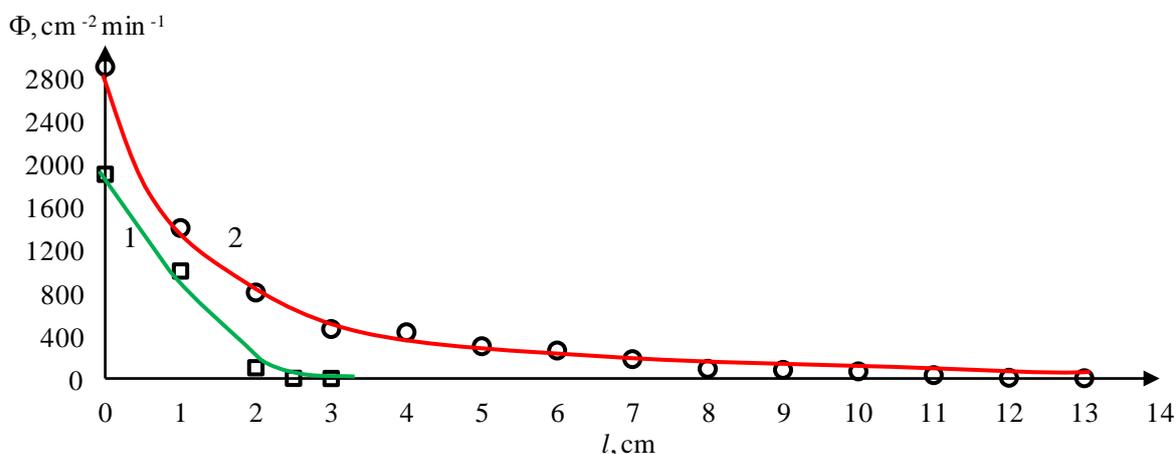


Рисунок 2.2 – Плотность потока альфа-частиц на различных расстояниях от источника. 1 – воздух, 2 – гелий

Для дополнительной проверки выводов из полученных результатов, устанавливали источник на расстоянии 6 см от детектора, а в камеру напускали гелий. При этом плотность потока составляла 250 альфа-частиц. После продувки камеры воздухом детектор перестал регистрировать альфа-частицы.

Распределение числа распадов радиоактивного источника постоянной интенсивности, является классическим примером распределения Пуассона. Стандартное отклонение при этом определяется по формуле:

$$\sigma = \sqrt{n}, \quad (2.5)$$

где n – число зарегистрированных частиц (импульсов).

В атмосфере гелия точность и порог измерения зависит от расстояния, на котором измеряется плотность потока частиц, и может увеличиваться до 2,8 раз. Отношение относительной ошибки измерения на заданном расстоянии в этом случае определяется по формуле:

$$K = \sqrt{\frac{n_g}{n_2} \cdot \frac{n_2}{n_g}}, \quad (2.6)$$

где n_g – плотность потока частиц в атмосфере воздуха, n_2 – плотность потока частиц в атмосфере гелия.

Интенсивность альфа-частиц, в зависимости от пройденного расстояния в ослабляющей среде, определяется по формуле:

$$I = I_0 \exp(-\alpha \cdot l) \quad (2.7)$$

где I_0 – начальная интенсивность источника, α – коэффициент ослабления среды, l – расстояние на котором регистрируется альфа-частица.

Поэтому при измерении альфа-загрязнения поверхности, скорость счета детектора, кроме активности образца, зависит от потерь излучения между образцом и детектором. В среде с большим пробегом альфа-частицы, требуется меньше времени для набора достаточных статистических данных. Поэтому в атмосфере гелия можно использовать большую скорость перемещения твэла через камеру, что увеличивает скорость контроля. Это связано с тем, что изменение необходимого времени контроля, при смене газа, пропорционально обратной величине отношения пробегов ионизирующих частиц в ослабляющих средах.

При расположении детектора на расстоянии 2 см от измеряемой поверхности твэла, отношение интенсивности регистрируемых частиц в гелии увеличивается в 8 раз, по сравнению с интенсивностью регистрации в воздухе. Поэтому время контроля альфа-загрязнения поверхности твэла в атмосфере с максимальным пробегом альфа-частиц во столько же раз уменьшается.

Разработка измерительного бокса для поста контроля. В боксе измерительного стенда (камере) необходимо разместить как минимум два детектора альфа-частиц, предназначенных для контроля загрязнения внутренней и наружной поверхности контролируемых объектов. Сформулируем требования к измерительному боксу автоматизированного стенда. Камера должна обеспечивать свободное и беспрепятственное перемещение контролируемых объектов, поддерживать постоянные условия измерения - сохранять газовую смесь с содержанием гелия выше некоторой заданной величины. Гелий легче воздуха. Поэтому окно герметичной камеры для внесения контролируемых объектов, должно располагаться в его нижней части (рисунок 2.3).

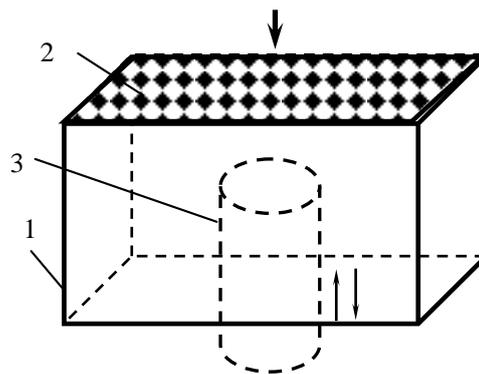


Рисунок 2.3 – Схема измерительной камеры. 1 – корпус, 2 – перфорация, 3 – подвижный цилиндр

При подаче контролируемого объекта, например, цилиндра, имеющего на своей поверхности радиоактивное альфа-загрязнение, вытесняется рабочая газовая смесь, а при выходе цилиндра из камеры в счетный объем затягивается воздух. В результате перемещения цилиндра в камере создаются завихрения, которые также затягивают воздух в счетный объем, уменьшая концентрацию

гелия. Также для поддержания концентрации гелия выше заданного значения необходима непрерывная подача газа в верхней части бокса.

Объем газа в камере и скорость подачи в него гелия являются основными параметрами, обеспечивающими, при заданной производительности оборудования, необходимое содержание гелия в газовой смеси измерительной камеры. Для оценки величин указанных параметров проводили расчет газовых потоков в смеси гелий-воздух при периодическом перемещении цилиндра внутри бокса.

При моделировании считали, что камера имеет форму параллелепипеда размером 18×25×50 см ориентированного вертикально с открытой частью вниз. В камеру помещается цилиндр диаметром 8 см с закругленным верхним торцом на время 2 секунды, который затем извлекается. Периодичность перемещения цилиндра составляет 10 секунд. Цилиндр останавливается на расстоянии 5 см от верхней части камеры. Камера наполняется гелием сверху равномерно. Результаты моделирования, с помощью программы Comsol, газовых потоков внутри камеры приведены на рисунке 2.4.

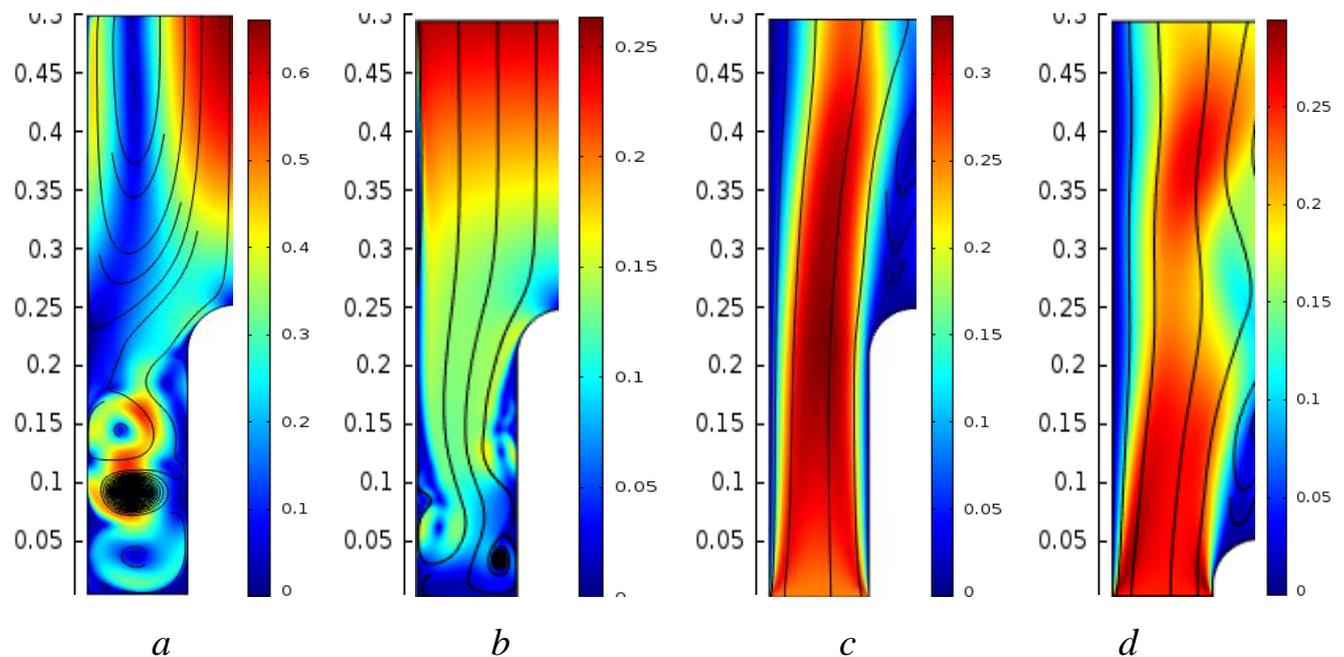


Рисунок 2.4 – Схема газовых потоков в камере при движении имитатора твэла:

a, b – вверх; *c, d* – вниз

Приведенные на рисунке 2.4 расчетные величины позволяют утверждать следующее. Движение цилиндра вверх по камере приводит к интенсивному формированию турбулентного потока в пространстве между цилиндром и корпусом. В объеме камеры над цилиндром сохраняется ламинарный поток. Поэтому перемешивание гелия с воздухом незначительное. При движении цилиндра вниз газовые вихри формируются в основном при его выходе из полости камеры. Поэтому каждый раз выход цилиндра из камеры формирует турбулентный поток, вихрь которого заменяет газовую смесь на чистый воздух в нижней части камеры. Поэтому разбавлению гелия в камере способствуют два процесса: вытеснение части гелия цилиндром с последующей заменой этого объема воздухом, замена гелия на воздух в результате выноса цилиндра из камеры, запускающего вихревое движение газа. На шкале рядом с каждым рисунком приведены шкалы линейных скоростей в м/с (справа) и высота перемещения (слева).

Экспериментальные испытания макета бокса для поста контроля. Для экспериментальных исследований использовали бокс объемом 22,5 л в форме параллелепипеда с размерами 18×25×50, ротаметр РМ-06 с максимальным расходом по воздуху 83 л/час, и масс-спектрометр МС-200. Масс-спектрометр МС-200 (МС) измеряет и приводит на графиках давление газов в камере анализатора, которое пропорционально парциальному давлению и концентрации этих газов. Гелий подавали из баллона через ротаметр. МС предназначен для анализа с постоянной откачкой при расходе пробы 110 мл/мин через капилляр длиной 5 м. Поэтому отбор пробы на МС проводили в течении менее 2 минут через равные промежутки времени. Для периодического внесения капилляра в камеру на его боковой стенке устанавливали вертикально трубку, заканчивающейся на расстоянии 5 см от верхнего торца.

Вначале оценивали скорость естественной утечки гелия из камеры. Для этого капилляр МС устанавливали на высоте 5 см от нижнего среза камеры. Открывали баллон с гелием. После установления стационарной концентрации гелия на срезе камеры, переносили пробоотборный капилляр МС в верхнюю часть

камеры по трубке, и прекращали подачу гелия. Отбор пробы на МС производили периодически. Результаты измерения приведены на рисунке 2.5.

Из графиков, приведенных на рисунке 2.5 видно, что в начальный момент в центре камеры парциальное давление гелия примерно в 2 раза больше, чем на срезе, что обусловлено постоянным разбавлением рабочей смеси за счет взаимной диффузии воздуха и гелия. Из сравнения первых двух пиков видно, что произошло уменьшение концентрации гелия 1,55 раз за 6 минут. Оценка скорости утечки гелия составляет 0,5 л/мин ($5,4 \text{ л} \cdot (0,99 - 0,64) / 4 \text{ мин} = 0,47 \text{ л/мин}$). Поэтому для поддержания в камере газовой смеси постоянного состава необходимо непрерывно подавать гелий в камеру.

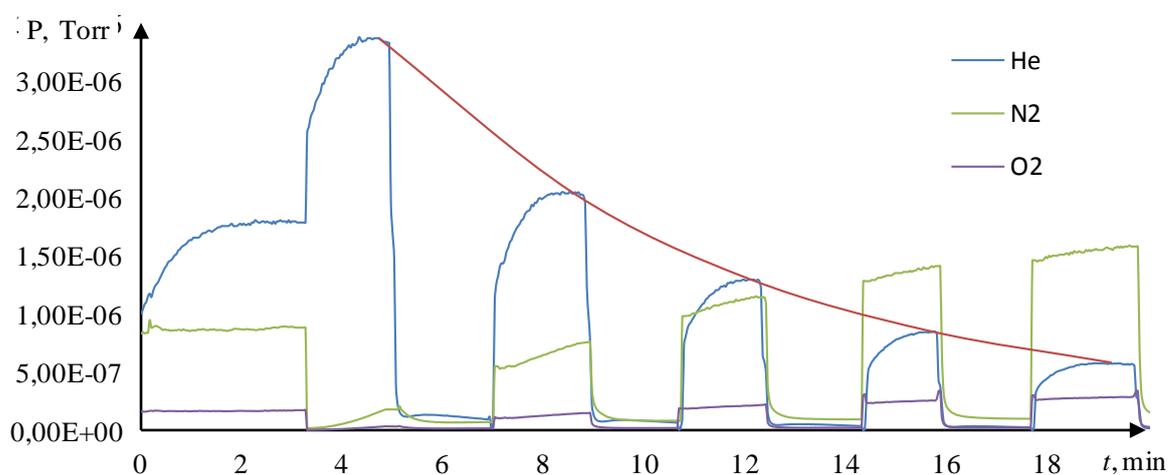


Рисунок 2.5 – Временной ход различных составляющих газовой смеси

Далее экспериментально определяли изменение парциального давления гелия при периодическом вносе в камеру и выносе цилиндра диаметром 8 см при различных величинах расхода гелия. Вначале подавали гелий в камеру до установления стационарной концентрации (первые 1,5 мин) и перекрывали его подачу. При внесении в камеру цилиндр останавливали на расстоянии 5 см от верхнего его торца. Манипуляцию с цилиндром в камере повторяли 4 раза с интервалом в 20 секунд. График изменения содержания гелия на расстоянии 5 см от верхнего торца камеры при внесении цилиндра, приведен на рисунке 2.6.

На графиках на рисунке 2.6 видны 4 небольших пика, которые связаны с внесением цилиндра в камеру. В начале перемещения цилиндра парциальное давление гелия повышается, а при извлечении цилиндра в освободившийся объем

засасывается воздух, поэтому концентрация гелия падает. После каждого пика видно смещение кривой вниз примерно на 5%. Оценка этой потери гелия составляют $5,4 \cdot 0,05 = 0,27$ л. Этот промежуток времени на рисунке 2.5 выделен кругом. Однако, более значительное уменьшение концентрации гелия наблюдается за счет его утечки через нижнюю часть камеры.

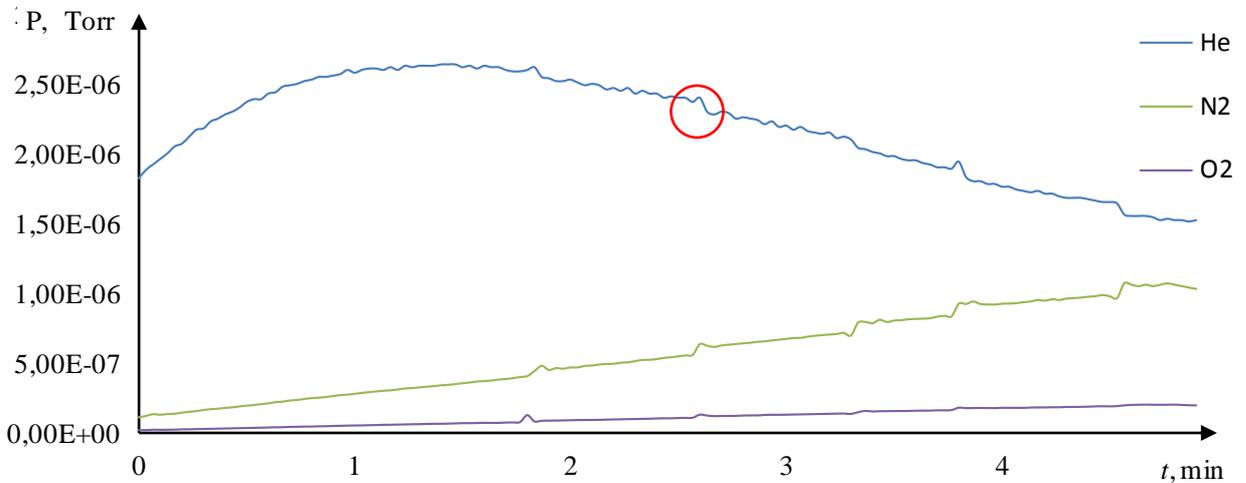


Рисунок 2.6 – График изменения состава газовой смеси в нижней части камеры

Для разработки поста контроля необходимо оценить минимальный расход гелия, при котором колебания его парциального давления будут незначительными. На рисунке 2.7 приведены графики изменения парциального давления при расходе гелия 33 л/ч, 50 л/ч, 66 л/ч и 83 л/ч, подаваемого с верхнего торца камеры.

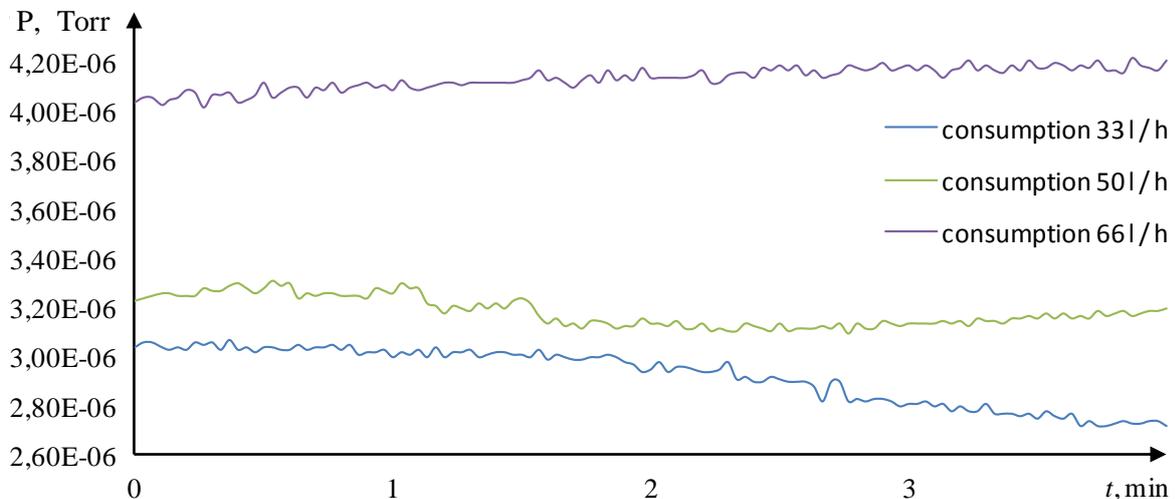


Рисунок 2.7 – Графики изменения парциального давления гелия, при его расходе 33 л/ч; 50 л/ч; 66 л/ч

Из рисунка 2.7 видно, что при расходе 33 л/ч, достигается стационарное состояние гелия при концентрации 84% от максимально возможной. При нескольких манипуляциях подвижным цилиндром внутри камеры концентрация гелия уменьшается. При расходе 50 л/ч, достигается стационарное состояние гелия на 90% от максимальной концентрации. При многократном повторном внесении цилиндра в камеру концентрация гелия уменьшается незначительно. При расходе 66 л/ч и 83 л/ч концентрация гелия в камере поддерживается на максимальном уровне [92]. При проведении нескольких манипуляций с цилиндром в камере концентрация гелия не изменяется, а колебания концентрации не заметны.

Разработка измерительной камеры для поста контроля поверхностного альфа-загрязнения твэла. Контроль различных объектов показал, что в счетном объеме камеры требуется постоянное поддержание концентрации гелия на максимальном уровне. Сформулируем требования к камере для контроля поверхностного загрязнения трубки твэла с учетом результатов, полученных ранее при альфа-контроле объектов простой формы. Длина твэла с мокс-топливом составляет около 200 см, с диаметром трубки, не превышающим 1 см. Поэтому выполнена камера в форме параллелепипеда размером 10×11×200 см ориентированного горизонтально, в нижней части которого имеется технологическое окно по всей длине камеры с шириной 2 см, для уменьшения расхода гелия (рисунок 2.8).

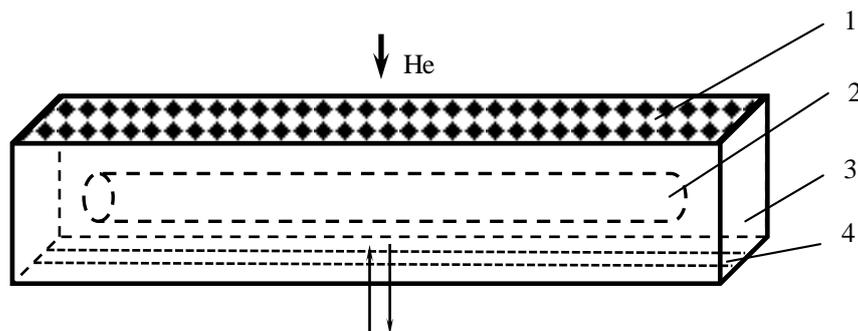


Рисунок 2.8 – Схема измерительной камеры. 1 – перфорация, 2 – имитатор твэла, 3 – корпус камеры, 4 – технологическое окно

Имитатор твэла выполнен в виде цилиндра длиной 195 см, объем которого равен объему твэла и составляет 76 см^3 . Имитатор твэла находится на четырех роликах транспортной системы и подается в технологическое окно измерительной камеры с помощью подъемного механизма через каждые 2 минуты на время 15 секунд, где останавливается на расстоянии 5 см от верхней части камеры. Гелий подается в прямоугольную камеру с верхнего торца по всей площади равномерно через перфорированную поверхность.

При контроле твэлов в измерительной камере концентрация гелия уменьшается. Это связано с процессами, описанными ранее, вытеснения части гелия турбулентными потоками, образованными движением твэла во время контроля. При этом стационарная концентрация гелия и его парциальное давление достигаются при минимально необходимом расходе гелия 50 л/ч.

Однако, при выполнении контроля твэлов на установке с вертикальным перемещением твэла, требуется затратить время на ориентацию трубки твэла под технологическое окно камеры, подъем и опускание твэла. Эти факторы способствовали разработке измерительной камеры проходного типа, представленной на рисунке 2.9.

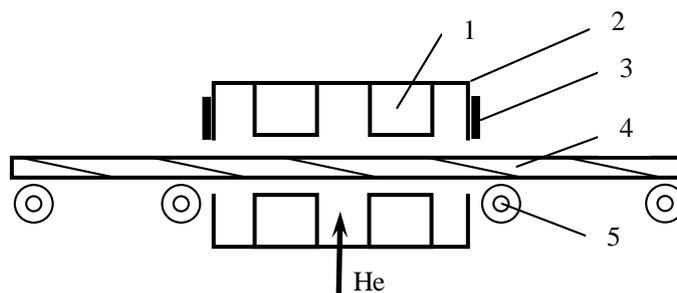


Рисунок 2.9 – Схема измерительной камеры проходного типа.

- 1 – детектор, 2 – корпус камеры, 3 – шибберный затвор,
4 – имитатор твэла, 5 – ролик транспортной системы.

В камере проходного типа размером $14 \times 14 \times 30$ см расположены две пары сцинтилляционных детекторов альфа-частиц друг напротив друга. В поперечном сечении четыре детектора расположены под углом 90° . Такое расположение детекторов обеспечивает контроль загрязнения поверхности по всему диаметру

трубки без остановки перемещения твэла. Над отверстиями диаметром 2 см на входе и выходе из измерительной камеры установлены шиберные затворы, срабатывающие по сигналу оптических датчиков при входе и выходе твэла из камеры для минимизации расхода гелия и поддержания стабильной концентрации газа в счетном объеме.

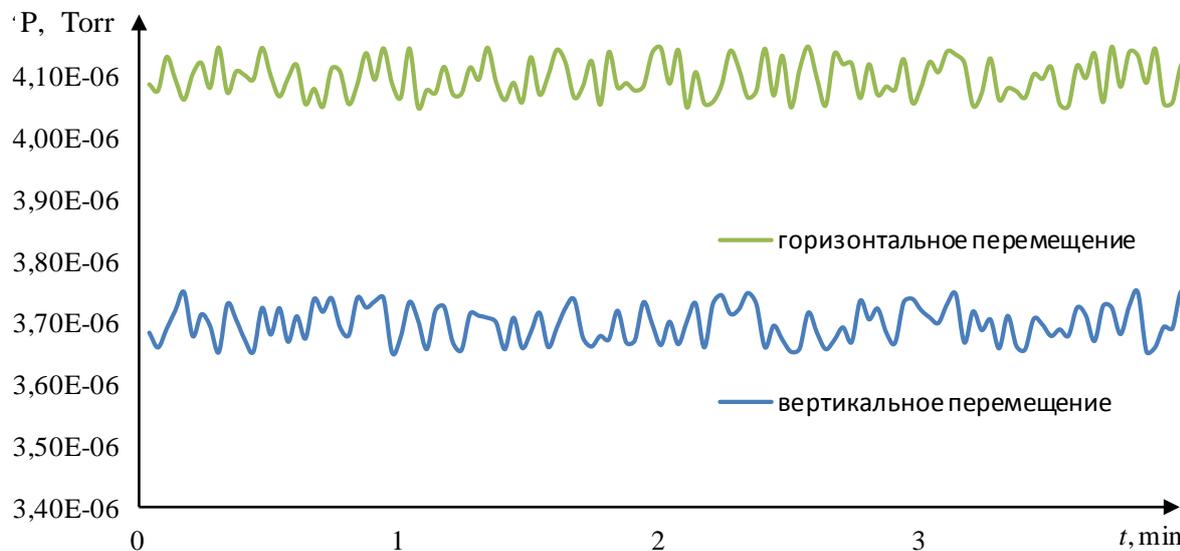


Рисунок 2.10 – Графики изменения парциального давления гелия при контроле твэлов с вертикальным и горизонтальным перемещением в камере

Стационарная концентрация гелия в камере проходного типа приведена на рисунке 2.10, для случая ведения непрерывного контроля твэлов на транспортной линии, и поддерживается при расходе гелия 33 л/ч. В отсутствии твэлов на транспортной линии, шиберные затворы находятся в закрытом состоянии, при этом подача гелия не производится.

На графиках на рисунке 2.10 стационарная концентрация гелия достигается при разных парциальных давлениях. В камере проходного типа парциальное давление гелия больше в связи с меньшим счетным объемом и площадью технологического окна, через которое происходит выход газа. Поэтому для контроля загрязнения поверхности твэлов при лазерной дезактивации на автоматической линии изготовления, оптимально использование камеры проходного типа объемом 5,9 литра, в которой поддерживается среда с максимальным пробегом альфа-частиц, при расходе гелия не менее 33 л/ч.

2.4 Метод контроля активности нефиксированного загрязнения, обусловленной радиоактивными дисперсными частицами

Для снижения уровня загрязнения технологического оборудования автоматической линии изготовления твэлов, контролируется снимаемое альфа-загрязнение твэлов. Для оценки опасности поверхностного радиоактивного загрязнения различных объектов, которые могут служить как источники последующего загрязнения, наиболее показателен контроль методом мазков. Как правило, контроль снимаемого альфа-загрязнения твэлов осуществляется методом сухого мазка в автоматическом или ручном режиме.

При использовании ручного метода контроля, коэффициент снятия сухого мазка практически не зависит от материала, при помощи которого отбирается мазок и составляет для непористых материалов 20%. При помощи салфеток из фильтровальной бумаги, проводится трехкратное снятие сухого мазка проведением по поверхности твэла с усилием 3-5 кг по контролируемому участку. С помощью блока детектирования, происходит измерение загрязненности салфетки. Результаты измерений регистрируются в единицах шкалы используемого средства измерения (альфа-частиц / (см²·мин)) и рассчитываются с учетом фона по формуле:

$$Q = \frac{1}{m} \sum_{j=1}^m (Q_{изм} - Q_{ф}), \quad (2.8)$$

где m – количество измерений, $Q_{изм}$ – средняя плотность потока альфа-частиц пятна салфетки, $Q_{ф}$ – фоновая средняя плотность потока альфа-частиц.

Данным методом обеспечивается суммарная относительная погрешность измерения не более 38% при доверительной вероятности 0,95 для плотности потока 1,5-5,0 альфа-частиц / (см²·мин).

Применяется автоматизированная установка для контроля поверхностного загрязнения твэла по методу сухого мазка [110, 111]. В качестве рабочего материала установки используется бязевая лента. Принцип работы поста заключается в подаче твэла на позицию контакта его поверхности с рабочим

материалом в виде тканевой ленты, которую также пошагово поперечно направляют к твэлу. При этом поверхность твэла механически плотно обжимают лентой снизу с нормированным усилием, не превышающим предела прочности тканевой ленты и твэла, но достаточным для сбора в нее мелкодисперсных частиц. Далее ленту с пятном загрязнения протягивают на позицию под детектор, регистрирующий наличие загрязненности. Плотность потока альфа-частиц снимаемого загрязнения с поверхности твэла рассчитывается по формуле:

$$Q = Q_M \frac{S_M}{S_T} \frac{1}{K_{cp}}, \quad (2.9)$$

где Q_M – средняя плотность потока альфа-частиц пятна мазка; S_M и S_T - площадь мазка и площадь твэла соответственно; K_{cp} – средний коэффициент удаления с помощью сухой салфетки.

Выбор материала ткани. Получение мазка с максимальным коэффициентом снятия загрязнения с поверхности твэла, обеспечивает снижение погрешности измерения снимаемой альфа-загрязненности. Поэтому проведены работы по выбору оптимального материала. В качестве рабочего материала для снятия сухого мазка возможно применение рулонов из ткани саржевого или полотняного плетения, с характеристиками указанными в таблице 2.1.

В качестве объектов измерений применялись имитаторы твэлов с нанесенной на них альфа-активностью, размеры и тип которых соответствуют реальным твэлам. При определении значений среднего коэффициента снятия мазка K_{cp} использовались имитаторы твэлов, плотность потока с поверхности которых составляла 20 альфа-частиц / (см²·мин). Для оценки показателя сходимости использованы имитаторы альфа-активностью которых составляла 1, 5, 20 альфа-частиц / (см²·мин).

Таблица 2.1 – Характеристики рабочей ткани для снятия сухого мазка

Тип ленты	Тип плетения	Ширина, мм	Толщина, мм
ЛЭ-40-62-х/б	Саржевое	40	0,38
ЛЭ-40-64-х/б	Полотняное	40	0,23

Для каждого имитатора твэла без дистанционирующей проволоки было проведено по 10 параллельных определений плотности потока. Результаты измерений плотности потока альфа-частиц и вычисления K_{cp} приведены в таблице 2.2.

Определяли значение среднего коэффициента снятия мазка K_{cp} в ткани сухого мазка и оценку погрешности определения этого коэффициента. Коэффициент K_{cp} вычислялся по формуле:

$$K_{cp} = Q_m \cdot \frac{S_m}{S_{me}} \cdot \frac{1}{Q}, \quad (2.10)$$

где S_m , S_{me} – площадь пятна сухого мазка и площадь поверхности имитатора твэла, равные 8,8 и 219,8 см² соответственно. Q_m – средняя плотность потока альфа-частиц с пятна сухого мазка. Аналогичным способом проведены измерения для твэла с круглой проволокой и плоской проволокой.

Таблица 2.2 – Результаты снятия сухого мазка тканью

n	тип ткани: саржевая			тип ткани: полотняная		
	Q	Q_m	K	Q	Q_m	K
1	21,64	228,56	0,423	21,28	184,26	0,347
2	20,53	226,43	0,442	21,11	179,63	0,341
3	20,78	236,84	0,456	22,57	188,97	0,335
4	20,85	212,34	0,408	21,36	164,25	0,308
5	21,53	235,89	0,439	20,87	207,63	0,398
6	20,96	233,24	0,446	22,31	178,94	0,321
7	21,32	235,47	0,442	21,52	188,41	0,351
8	21,52	202,76	0,377	21,87	181,81	0,333
9	22,13	214,51	0,388	22,26	179,81	0,323
10	22,05	231,48	0,420	20,84	183,59	0,353
ср. зн.	21,3	225,8	0,42	21,6	183,7	0,34

Анализ полученных результатов показал следующее. Лучшие свойства удаления радиоактивных частиц наблюдаются у ткани саржевого плетения. Саржевое переплетение обладает повышенной плотностью нитей, и поэтому достигается наиболее полное прилегание полотна к поверхности трубки твэла. Лента для очистки поверхности, выполненная из простого полотняного переплетения, обладает меньшей толщиной и обеспечивает меньшую площадь контакта с поверхностью при протягивании трубки твэла, по сравнению с саржевым переплетением.

Исследование метрологических характеристик, оценка погрешности измерений проводились по известным методикам и формулам основанных на экспериментальных данных соответствующих нормальному закону распределения.

Среднее квадратичное отклонение абсолютной случайной составляющей погрешности результата определения K_{cp} , $\sigma_{K_{cp}}$ (СКО), вычисляли по формуле:

$$\sigma_{K_{cp}} = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n=10} (K_i - K_{cp})^2}{n(n-1)}}. \quad (2.11)$$

Доверительные границы абсолютной случайной составляющей погрешности результата определения K_{cp} , $\Delta(\varepsilon_{K_{cp}})$, и доверительные границы относительной случайной составляющей погрешности результата определения K_{cp} , $\delta(\varepsilon_{K_{cp}})$, %, вычисляли по формулам:

$$\Delta(\varepsilon_{K_{cp}}) = t \cdot \sigma_{K_{cp}}, \quad (2.12)$$

$$\delta(\varepsilon_{K_{cp}}) = \frac{\Delta(\varepsilon_{K_{cp}})}{K_{cp}} \cdot 100, \quad (2.13)$$

где t – коэффициент Стьюдента, равный 2,101 при $P=0,95$, числе степеней свободы, равном 18 и нормальном законе распределения.

Доверительные границы (без учета знака) относительной погрешности результата определения K_{cp} , $\delta(K_{cp})$, %, вычисляли по формуле:

$$\delta(K_{cp}) = K^* \cdot \delta(\varepsilon_{K_{cp}}), \quad (2.14)$$

где K^* – коэффициент, зависящий от доверительной вероятности P .

В результате использования ленты из ткани саржевого плетения при снятии сухого мазка в автоматическом режиме, суммарная относительная погрешность измерения составила 34,8% при доверительной вероятности 0,95 для плотности потока 1 до 20 альфа-частиц / (см²·мин) [95].

Таким образом, для обеспечения радиационной безопасности производства и контроля качества выпускаемой продукции, применяются различные методы контроля загрязненности поверхности твэла, имеющие схожие принципы работы. Автоматический способ контроля имеет меньшую суммарную относительную погрешность измерения по сравнению с ручным способом на 3%, при доверительной вероятности 0,95, а измеряемый диапазон увеличивается в 4 раза.

Эксперимент также показателен тем, что метод удаления радиоактивных частиц с поверхности трубки твэла с использованием чистящей ткани ручным и автоматическим способом имеет низкий коэффициент дезактивации (до 1,7) и не позволяет полностью удалить даже нефиксированное (снимаемое) поверхностное альфа-загрязнение.

2.5 Выводы по главе 2

1. Пробег альфа-частиц в воздухе не превышает 2,5 см. Поэтому создание автоматизированной системы контроля общего альфа-загрязнения поверхности, требует применение дополнительных технических и технологических решений. Установлено, что в атмосфере гелия пробег альфа-частицы, испускаемой изотопом ^{239}Pu составляет 12 см [92].

2. Экспериментально показано, что автоматизация процесса контроля общего поверхностного альфа-загрязнения твэла при лазерной дезактивации возможна с использованием камеры проходного типа, в которой реализована система поддержания среды с максимальным пробегом альфа-частиц. Такие условия позволяют до 2,8 раз увеличить точность измерения. Для этого необходимо использование детекторов в камере с атмосферой гелия объемом 5,9 литра, в которой поддерживается расход гелия не менее 33 л/ч.

3. Использование автоматического способа определения снимаемого альфа-загрязнения поверхности методом снятия сухого мазка, снижает суммарную относительную погрешность, по сравнению с ручным способом измерения на 3%, при доверительной вероятности 0,95, а измеряемый диапазон увеличивается в 4 раза. Автоматизированные системы контроля альфа-загрязнений имеют меньшую погрешность измерения, исключают человеческий фактор.

4. Показано, что существующая технология дезактивации поверхности трубки твэла с использованием чистящей ткани ручным или автоматическим способом малоэффективна. Использование чистящей ткани не позволяет полностью удалить даже нефиксированное загрязнение поверхности трубки. Коэффициент дезактивации при этом не превышает 1,7.

ГЛАВА 3. РАЗРАБОТКА МЕТОДА ЛАЗЕРНОЙ ОЧИСТКИ СВАРНЫХ ШВОВ СТАЛИ ОТ ПОЛУПРОВОДНИКОВЫХ ЧАСТИЦ ПЫЛИ

Производство новых видов ядерного топлива требует применение дополнительных технологических операций, в отличие от производства традиционного топлива из диоксида урана, для обеспечения выполнения современных стандартов качества. Поэтому требуется дополнительное оборудование и методы контроля в технологическом процессе производства ядерного топлива. Например, при производстве твэлов с мокс-топливом, обеспечивающего реализацию замкнутого ЯТЦ, одной из контрольных операций является измерение общего и снимаемого загрязнения альфа-активными радионуклидами. Это связано с тем, что топливо содержит плутоний и сопутствующие ему продукты распада в различных концентрациях и разного изотопного состава. Плутоний, содержащийся в ядерном топливе, имеет высокую активность и испытывает в основном альфа-распад. Поэтому попадание на внешнюю поверхность трубки твэла микрочастиц ядерного топлива формирует значительное поверхностное альфа-загрязнение.

При изготовлении твэлов проводится операция по загрузке трубки топливным столбом и ее герметизация сварным соединением. Различные способы передачи топливного столба в трубку твэла неизбежно образуют мелкодисперсные радиоактивные микрочастицы топлива, которые попадают на торцевую часть трубки и при последующей герметизации фиксируются в сварном шве между трубкой и заглушкой. В результате формируется загрязнение поверхности твэла по сварному шву заглушки. Загрязнение твэла представляет из себя микрочастицы мокс-топлива находящиеся на поверхности трубки, в результате контакта с поверхностями технологического оборудования, а также включения на различную глубину в сварочный шов заглушки твэла микрочастиц топлива. Частицы мокс-топлива, внедренные на различную глубину в сварочный шов заглушки твэла, не удаляются тканевой протиркой или с помощью тканевого чистящего картриджа [47].

При контроле поверхностного загрязнения определяют активность внешней поверхности трубки твэла на некоторой длине. ТУ на твэл требуют, чтобы средняя активность по n -измерениям на примыкающих участках не превышала поток в несколько десятков альфа-частиц на см^2 в минуту.

Дезактивация твердых радиоактивных отходов возможна путем послонного испарения материала в плазме [112]. Такое испарение приводит к разрушению поверхности и требует контроля параметров плазменного потока [113].

Исследования, результаты которых приведены в главе, связаны с разработкой метода и процесса лазерной дезактивации поверхности и сварного шва оболочки твэла. Результаты исследований опубликованы в статьях [114, 115] и обсуждались на конференциях [116 - 123].

3.1 Обоснование метода лазерной очистки от поверхностного загрязнения частицами пыли

Металлы и их оксиды имеют достаточно высокую теплопроводность. Поэтому непрерывный поверхностный нагрев приводит к повышению температуры во всем объеме и плавлению. Известен подход к поверхностному испарению металлов – импульсное лазерное облучение.

Одним из факторов влияющих на эффективность лазерных технологий является комплексный показатель преломления материалов. Нагрев микрочастиц энергией лазерного излучения во многом зависит от оптических свойств вещества. Поэтому металлические и оксидные микрочастицы будут нагреваться с разной скоростью из-за того, что имеют разные показатели преломления. При этом возможно селективное испарение внедренных микрочастиц в оксидной форме, находящихся в поверхностных слоях металлической матрицы. Селективному испарению фиксированных частиц оксидов способствует их меньшая теплопроводность и высокий коэффициент поглощения лазерного излучения на рабочей длине волны. Металлы и оксиды металлов также отличаются теплоемкостью, температурами плавления и кипения.

При лазерном нагреве мишени изменение температуры в объеме зависит от теплофизических параметров вещества и параметров падающего импульса излучения [124]

$$T = \frac{\varepsilon I_0 \pi r_b^2 \tau_i}{V c \rho}, \quad (3.1)$$

где ε – коэффициент поглощения, I_0 – плотность мощности потока лазерного излучения, r_b – радиус лазерного пучка, τ_i – длительность импульса, c – удельная теплоемкость, ρ – плотность вещества, V – объем прогреваемого вещества.

$$W_T = \rho \cdot (c \cdot (T_{liq} - T_0) + H_{liq}) \cdot \frac{\pi \cdot (d_b + 2\sqrt{a\tau_i})^2 \cdot z_r}{4}. \quad (3.2)$$

Из-за того, что материал оболочки твэла обладает большей теплопроводностью, по сравнению с оксидами урана и плутония, то возможно подобрать режимы лазерного воздействия, при которых будут испаряться частицы оксида урана и плутония. Энергия, поглощенная в оболочке твэла, будет рассеиваться в объеме металла за счет его высокой теплопроводности. При этом лазерное воздействие не повреждает трубку.

$$W_0 \cdot A = \rho \cdot (c \cdot (T_{evap} - T_0) + H_{liq} + H_{evap}) \cdot \frac{\pi \cdot (d_b + 2\sqrt{a\tau_i})^2 \cdot z_r}{4}. \quad (3.3)$$

Для применения в экспериментальных исследованиях высокоактивного и токсичного PuO_2 , требуется использование специального защитного оборудования и выполнения жестких требований радиационной безопасности. Поэтому необходимо подобрать имитаторы, моделирующие параметры радионуклидов. Наиболее приемлемы оксиды лантаноидов, с помощью которых можно имитировать UO_2 , PuO_2 по соотношению теплофизических свойств: температуры плавления и кипения, теплопроводность, теплоемкость.

Анализ теплофизических параметров веществ показывает, что для моделирования теплофизических свойств смеси UO_2 и PuO_2 , возможно использование смеси оксида церия с другим лантаноидом, например, Nd_2O_3 или с актиноидом ThO_2 . Эти оксиды имеют схожую зависимость теплопроводности от температуры, а также температуры кипения и плавления.

Выбор длины волны и длительности лазерного излучения. Из-за наличия свободных электронов у металлов, наблюдается достаточно высокая отражающая способность среднего и дальнего ИК-диапазона электромагнитного излучения. Оптическое излучение проникает в приповерхностный слой металла на глубину порядка $\lambda/3$. При этом коротковолновое оптическое излучение не успевает передать большую часть своей энергии свободным электронам и почти полностью отражается. Поэтому поглощение металлами электромагнитного излучения УФ-диапазона малоэффективно. Поглощательная способность различных металлов описывается функцией, которая зависит от частоты падающего излучения, температуры и электропроводности материала:

$$A = f(\omega, T, \sigma). \quad (3.4)$$

В целом, с увеличением частоты электромагнитного излучения, поглощательная способность металла возрастает. В связи с этим для обработки металлов предпочтительны твердотельные лазеры работающие на длине волны ближнего ИК-диапазона или УФ лазеры.

Механизм нагрева полупроводниковых и неметаллических микрочастиц в поле лазерного излучения существенно отличается, ввиду отсутствия в них электронов проводимости. При рассмотрении взаимодействия лазерного излучения с полупроводниками, следует учитывать ширину запрещенной зоны облучаемых частиц и энергию квантов лазерного излучения. Ширина запрещенной зоны (E_g) некоторых составляющих мокси-топлива [67, 125, 126, 127] приведена в таблице 3.1. Взаимодействие лазерного излучения, у которого энергия кванта превышает ширину запрещенной зоны вещества, делает возможным переход электрона между валентной зоной и зоной проводимости, сопровождающееся перераспределением импульса и изменением их квантово-механического состояния. Поэтому передача энергии лазерного излучения ультрафиолетовой области возможна за счет возбуждения атома полупроводника с последующими процессами рекомбинации. Излучение с энергией кванта, не

превышающей ширину запрещенной зоны оксидов UO_2 и PuO_2 , прозрачно для микрочастиц мокс-топлива.

С увеличением длины волны лазерного излучения, уменьшается энергия квантов излучения. При достижении пороговой длины волны с энергией квантов не превышающей ширину запрещенной зоны полупроводника, процесс перевода излучения в тепло за счет процессов рекомбинации электронов на зонных уровнях не реализуется. Возможен механизм нагрева полупроводников за счет возбуждения колебаний атомов и молекул вещества твердого тела, посредством облучения лазерным излучением среднего ИК-диапазона. Поэтому, для воздействия на полупроводниковые оксидные микрочастицы мокс-топлива предпочтительнее использовать лазерное излучение, например, в средней ИК области. В этот диапазон попадает излучение CO_2 -лазера, длина волны которого составляет 10,6 мкм.

Ввиду отличия оптических свойств материалов, влияющих на эффективность поглощения лазерного излучения, а также теплофизических свойств, металл и оксидные микрочастицы будут нагреваться с разной скоростью. В таблице 3.1 приведены следующие теплофизические характеристики используемых материалов: удельная теплоемкость для твердого (C_1) и жидкого (C_2) агрегатных состояний, удельная теплота плавления и испарения ($Q_{пл}$, $Q_{исп}$), температура плавления и испарения ($T_{пл}$, $T_{исп}$) [128, 129].

Таблица 3.1 – Электрические и теплофизические свойства используемых материалов

материал	E_g , эВ	C_1 , Дж/(кг·К)	C_2 , Дж/(кг·К)	$Q_{пл}$ кДж/кг	$Q_{исп}$ кДж/кг	$T_{пл}$, °С	$T_{исп}$, °С
сталь	-	560	750	270	6300	1538	2861
UO_2	2,1	320	400	277	1681	2865	3640
PuO_2	2,8	380	424	227	1363	2400	2800
CeO_2	3,4	400	444	462	1480	2400	3500
ThO_2	4,4	360	452	340	-	3300	4400

При этом возможно селективное испарение фиксированных в поверхностном слое металлической матрицы дисперсных частиц в оксидной форме. Для селективного испарения частиц оксидов лантаноидов и актиноидов следует учитывать высокую теплопроводность металлов. Поэтому необходимо использовать импульсное лазерное излучение длительностью менее 1 мкс.

Экспериментальная установка для лазерной дезактивации твэлов. Для проведения экспериментальных исследований по оптимизации параметров лазерного воздействия при дезактивации поверхности от радиоактивных микрочастиц была собрана установка, представленная на рисунке 3.1, которая содержит квантовый генератор с активным элементом из алюмоиттриевого граната на неодиме (YAG:Nd), блок питания БПЛ-66/33, фокусирующую линзу, позиционирующие устройство с закрепленным фрагментом трубки твэла.

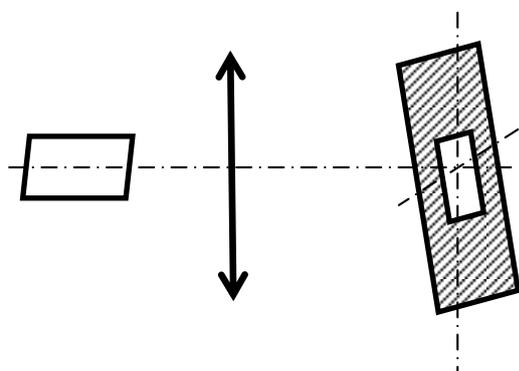


Рисунок 3.1 – Принципиальная схема и фотография экспериментальной установки

Использовали лазерный луч длиной волны 1,06 мкм в режиме свободной генерации, имеющий длительность 1-1,5 мс. Облучаемый образец размещали на столике, перемещаемом по трем координатам. Перед началом облучения образец, размерами 10×6 мм, выводили в фокальную плоскость линзы, область фокусировки устанавливали на краю образца. Во время облучения с частотой 1 или 3 Гц образец перемещали по одной линии с помощью шагового двигателя в автоматизированном режиме, обеспечивающий заданное перекрытие фокальных

пятен, а в перпендикулярном направлении - вручную. Это позволяло использовать импульсный лазер в установившемся режиме. При этом выходное напряжение БПЛ изменяли в диапазоне 650-850 В во время ручной перестройки положения образца относительно луча.

3.2 Исследование лазерной очистки поверхности металла от микрочастиц

Воздействие лазерного излучения на подложку способствует образованию интенсивного теплового расширения и испарительных эффектов, что приводит к появлению взрывных эффектов и инерционных сил. При прохождении лазерного импульса через прозрачную лазерному излучению частицу, вокруг области контакта возникает термическое напряжение, которое создает направленную силу. В результате воздействия сил инерции, направленных от подложки, микрочастица покидает поверхность металла. Если инерционная сила больше силы адгезии, которая определяется по формуле (3.5), выполняется условие для удаления микрочастицы с поверхности.

$$F_a < \frac{I_{\max}}{\tau_1} m \left(\frac{\alpha_s \varepsilon_s}{\rho_s c_s} + k \frac{\alpha_p \varepsilon_p}{\rho_p c_p} \right), \quad (3.5)$$

где F_a - сила адгезии частицы к поверхности подложки, I_{\max} - максимальная интенсивность лазерного импульса, τ_1 - длительность заднего фронта импульса, m - масса микрочастицы, альфа - линейный коэффициент термического расширения, ε - поглощательная способность, ρ - плотность, c - теплоемкость, k - коэффициент. Индекс „s“ относится к основному материалу, „p“ - к микрочастицам. Коэффициент $k = 0 \div 1$ определяет связь термического расширения всей частицы со смещением ее центра массы. Для микронных и субмикронных микрочастиц преобладающими силами адгезии являются силы Ван-дер-Ваальса, а при наличии жидкой пленки - капиллярные силы.

Для проверки возможности лазерной дезактивации, использовали UO_2 природного изотопного состава, который механически натерли на поверхность трубки твэла. Для определения активности образца применялся гамма-

спектрометр, позволяющий задавать длительное время экспонирования для набора достаточной статистики. При известном изотопном составе образца можно использовать гамма-спектрометр с невысокой разрешающей способностью, например, гамма-спектрометр Canberra серии 802 со сцинтиллятором из NaI со «свинцовым домиком». Для набора и обработки спектров использовалось специализированное программное обеспечение Genie-2000. Вначале измеряли активность образцов размерами 5*5 мм, не имеющих радиоактивного загрязнения. Далее наносили радиоактивное загрязнение и повторно регистрировали активность. Наличие ^{235}U обуславливает излучение гамма-квантов в канале №34 соответствующий энергии гамма-квантов 185,7 эВ. На рисунке 3.2 представлен гамма-спектр образца с чистой поверхностью (до нанесения загрязнения), а также с нанесенным на эту поверхность загрязнением в виде микрочастиц оксида урана. Выделен канал с энергией 185,7 эВ, характерный для ^{235}U . Из-за наличия микрочастиц оксида урана на образце, суммарное количество импульсов гамма-спектра возросло с 4998 до 6146 за 30 минут экспонирования.

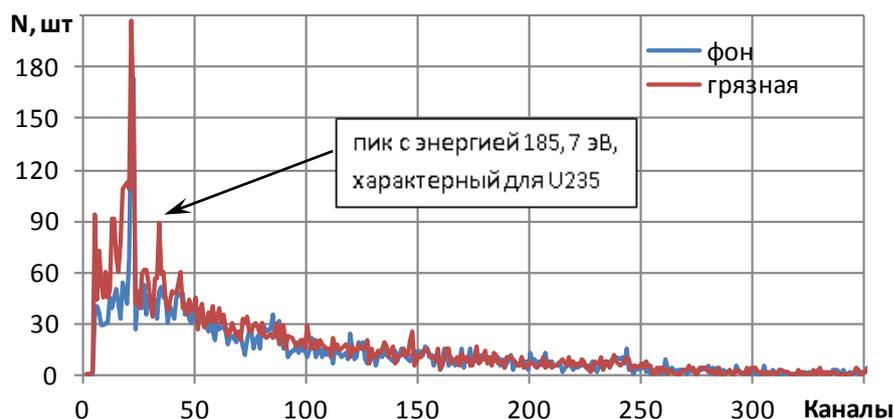


Рисунок 3.2 – Гамма-спектр образцов

Затем образцы с поверхностным загрязнением в виде микрочастиц из оксида урана, облучались лазерными импульсами длительностью 1,5 мс (лазер на неодиме) так, чтобы соседние фокальные пятна размером 0,2 мм перекрывались на $\sim 1/2$ их диаметра. Облучение начинали с верхнего края и точку облучения перемещали по всей поверхности. Также лазерное облучение начинали и

заканчивали за пределами образца.

Для предотвращения повторного загрязнения поверхности образца и распространения микрочастиц оксида урана в воздухе, вокруг обрабатываемой поверхности закреплена сорбирующая пленка на клеевой основе. Такое решение позволяет улавливать на поверхности сорбирующей пленки микрочастицы размером до 2 мкм, которые могут удаляться с поверхности лазерным излучением за счет инерционных сил резкого расширения подложки.

Размер частиц UO_2 по ТУ варьируется от 0,4 до 0,6 мкм и в случае их удаления с поверхности лазерным излучением в термомеханическом режиме, скорость оседания частицы в воздухе не превышает 1,39 мкм/с [130]. Такие условия позволяют удалять частицы UO_2 в специальную общую вытяжную вентиляцию, не допуская повторного загрязнения поверхностей. Использование специальной местной вытяжной вентиляции в поле обработки образца лазерным лучом, полностью исключает повторное загрязнение поверхностей оседающими частицами, полученными в результате абляции.

На рисунке 3.3 приведены гамма-спектры четырех испытываемых образцов, до нанесения и с нанесенным поверхностным радиоактивным загрязнением, а также после лазерной обработки лучом с интенсивностью: 38,5 кВт/см², 27,8 кВт/см², 26,3 кВт/см², 17,8 кВт/см². Приведена лишь характерная для изотопа ^{235}U , в уране природной концентрации, линия с энергией 185,7 эВ, имеющая наибольшую интенсивность. Облучаемые образцы имели разную активность из-за случайного характера загрязнения микрочастицами урана.

После воздействия лазерным излучением, интенсивность пика, характерного для изотопа ^{235}U , уменьшилась в среднем с 79 до 57 импульсов для четырех образцов. Интенсивность пика, характерного для изотопа ^{235}U , приведена в таблице 3.2 для каждого исследуемого образца. Стандартное отклонение в этом случае описывается распределением Пуассона и определяется по формуле (2.5).

В соответствии с ГОСТ 12.4.265-014 для оценки степени очистки рекомендуется использовать коэффициент дезактивации, который определяется как отношение уровней радиоактивного загрязнения до и после дезактивации

образцов, за вычетом фона. Коэффициент дезактивации (K) приведен в таблице 3.2 для каждого исследуемого образца.

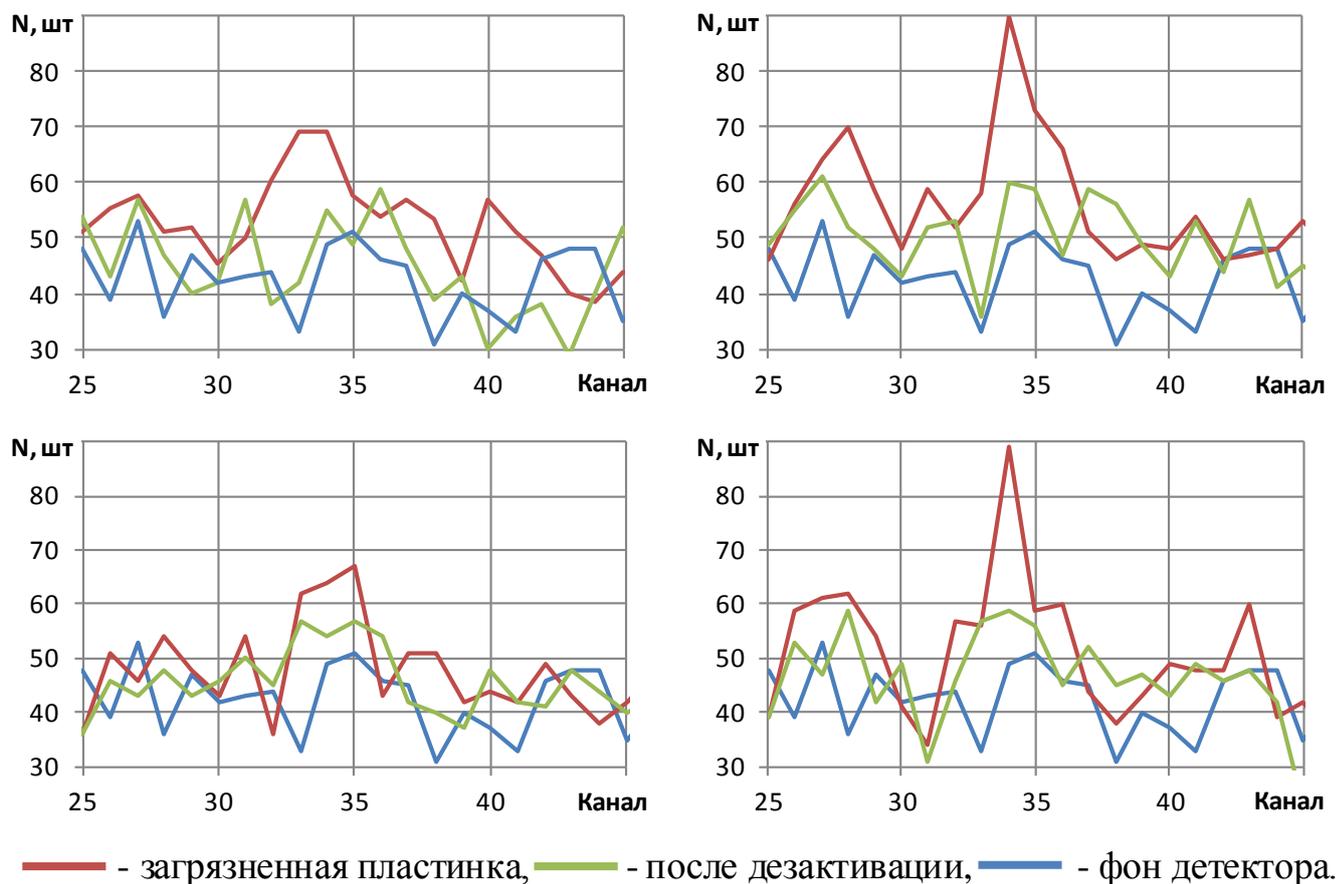


Рисунок 3.3 – Гамма-спектры образцов в области пика ^{235}U

Таблица 3.2 – Интенсивность характерного для изотопа ^{235}U пика до и после воздействия лазерного излучения с оценкой коэффициента дезактивации

Образец	Интенсивность до дезактивации, имп.	Интенсивность после дезактивации, имп.	Фон прибора, имп.	K
№ 1	69	55	51	4,50
№ 2	67	54	51	5,33
№ 3	90	59	51	4,88
№ 4	89	59	51	4,75

Активность облучаемых образцов приблизилась к фоновому значению, которое составляет 51 импульс. Логично связать уменьшение активности с удалением микрочастиц UO_2 с поверхности образца в результате лазерного облучения высокой интенсивности. Анализ спектров радиоактивного излучения

на рисунке 3.3 показал, при интенсивности лазерного излучения более $17,8 \text{ кВт/см}^2$ происходит удаление радиоактивных микрочастиц из оксида урана, удерживаемых на поверхности стали ЧС-68 силами Ван-дер-Ваальса [114].

Зависимости глубины и профиля кратера от интенсивности излучения.

Воздействие лазерных импульсов высокой интенсивности на поверхность металлов может сопровождаться испарением материала, что приводит к формированию эрозионного кратера. Поэтому при дезактивации железа и нержавеющей стали, увеличивается шероховатость их поверхности.

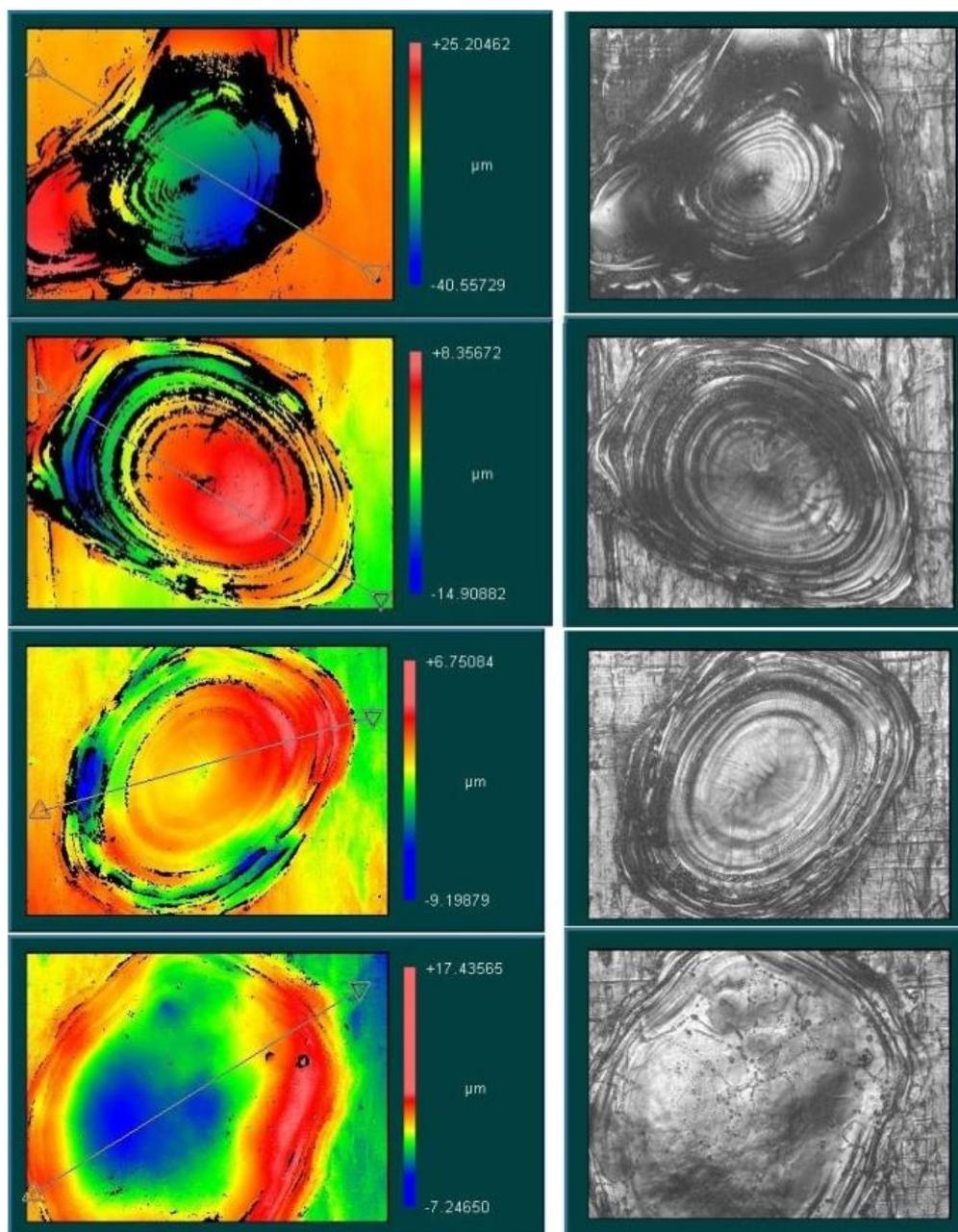


Рисунок 3.4 – Микроизображения кратеров при интенсивности излучения (сверху – вниз): 1 – 38,5; 2 – 27,8; 3 – 26,3; 4 – 17,8 кВт/см²

По требованиям технических условий, на внешней поверхности трубки твэла не должно быть дефектов глубиной более: 20 мкм - на оболочке, поверхности проволоки и сварных швах, 200 мкм - на концевых деталях. На рисунке 3.4 приведены микроизображения кратеров, полученных при лазерном облучении с интенсивностью 38,5 кВт/см², 27,8 кВт/см², 26,3 кВт/см², 17,8 кВт/см² соответственно. Из изображений, видно, что при интенсивности излучения 38,5 кВт/см² на поверхности образца формируются глубокие кратеры, которые могут приводить к отбраковке продукции по техническим условиям. Поэтому определяли профиль поверхности кратера.

На рисунке 3.5 приведены профили кратеров, изображенных на рисунке 3.4. Профили получены на интерференционном профилометре New View 6200. Видно, что при интенсивности лазерного излучения 38,5 кВт/см² формируются недопустимые по ТУ дефекты глубиной до 40 мкм. При интенсивности не более 27,8 кВт/см² глубина кратера не выходит за пределы требований ТУ [114]. Наибольшая глубина испарения наблюдается на периферийной области по кругу. При интенсивности излучения 38,5 кВт/см² образуются кратеры глубиной до 54 мкм. Асимметрия формы кратера связана с неравномерным распределением энергии излучения по сечению фокального пятна.

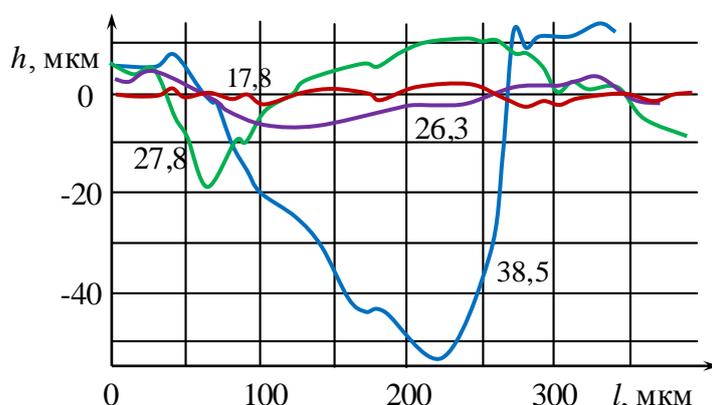


Рисунок 3.5 – Профили кратеров лазерных импульсов разной интенсивности.

Числа возле кривых – интенсивность излучения в кВт/см²

Измерение шероховатости поверхности облученных образцов. Лазерное облучение высокой интенсивности может приводить к плавлению и испарению

материала подложки, что сопровождается формированием эрозионного кратера, профиль которого приведен на рисунке 3.6. Из-за неравномерного распределения энергии излучения, в центре воздействия фокального пятна наблюдается яма, а по краям - наплыв расплава. Поэтому при лазерной дезактивации поверхности увеличивается шероховатость.

Изменение шероховатости существенно влияет на возможность поглощения лазерного излучения. Средний коэффициент поглощения ζ лазерного излучения в заданном интервале температур для поверхности, имеющей шероховатость, отличается от гладкой поверхности.

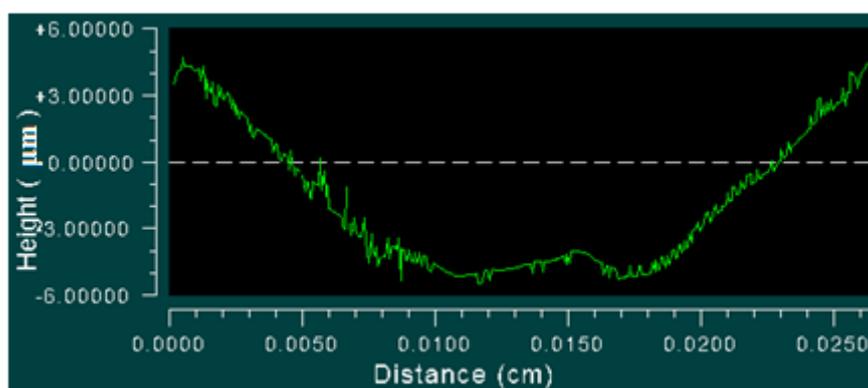


Рисунок 3.6 – Профиль эрозионного кратера лазерного импульса

Сечение поглощения для шероховатостей полусферической формы радиусом a в случае $\lambda \gg a$ и длина волны электромагнитного поля в веществе дефекта δ в случае $\delta \ll a$ определяется по формуле:

$$\sigma = 3\pi a^2 \zeta. \quad (3.6)$$

В случае $\lambda \ll a$, $\delta \ll a$, поглощение становится аналогичным поглощению на плоской поверхности и определяется как:

$$\sigma = \pi a^2 \zeta. \quad (3.7)$$

Отношение сечений из формулы (3.6) и (3.7) для гладкой и шероховатой поверхности показывает, увеличение сечения поглощения шероховатой поверхностью в три раза.

Исследование изменения шероховатости, после воздействия лазерного излучения с длиной волны 1,06 мкм, мишени, имитирующей поверхность трубки

твэла, проводили импульсами в режиме свободной генерации. Для удаления прилипших к стали дисперсных частиц лазерный луч фокусировали в пятно диаметром 200-500 мкм. Для абляции лазерный луч фокусировали в пятно диаметром 130-330 мкм. После каждого импульса деталь смещали на величину диаметра фокального пятна относительно лазерного луча по одной прямой.

Шероховатость поверхности определяли с помощью программного обеспечения Metro Pro и интерференционного профилометра New View 6200. В автоматическом режиме программное обеспечение Metro Pro проводит расчет наибольшей высоты профиля (R_{max}) и среднеквадратичной шероховатости (R_{ms}), которая в общем случае является среднеквадратичным значением отклонений профиля в пределах базовой длины и определяется по формуле:

$$R_{ms} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N r_n^2}, \quad (3.8)$$

где r_n – высота выступа профиля.

Деактивация поверхности стали от прилипших радиоактивных частиц не приводит к недопустимому изменению шероховатости. Профиль поверхности стали ЧС-68, облученной лазерными импульсами для очистки от внедренных в поверхностный слой металла микрочастиц, приведен на рисунке 3.7.

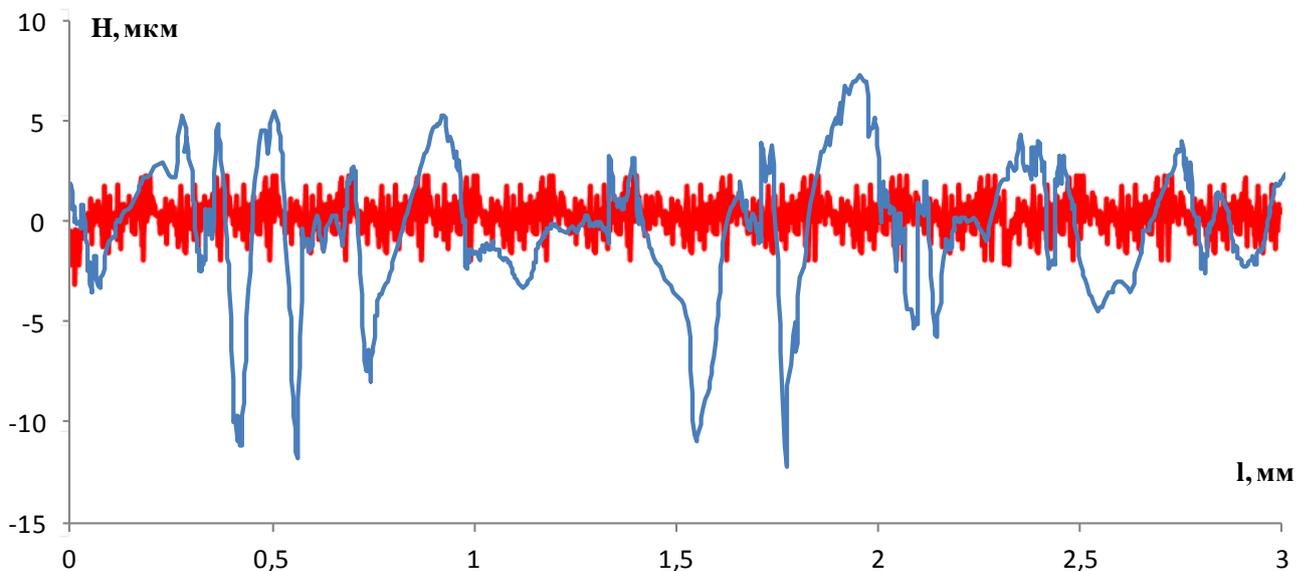


Рисунок 3.7 – Профиль поверхности стали по линии перемещения лазерного пятна

— до дезактивации, — после дезактивации

Начальная среднеквадратичная шероховатость составляла $R_{ms}=0,491$ мкм, наибольшая высота профиля $R_{max}=5,16$ мкм ($R_v=-3,04$ и $R_p=2,12$ мкм). После воздействия лазерными импульсами на поверхность, среднеквадратичная шероховатость составила $R_{ms}=6,659$ мкм, а наибольшая высота профиля $R_{max}=19,24$ мкм ($R_v=-12,27$ и $R_p=6,97$ мкм).

На рисунке 3.8 приведены кривые изменения шероховатости поверхности мишени в зависимости от интенсивности воздействующего лазерного излучения $\lambda=1,06$ мкм. Видно, что при интенсивности излучения от 28 кВт/см^2 на поверхности образца значительно возрастает среднеквадратичная шероховатость и высота профиля. Это может быть связано с формированием глубоких кратеров, которые могут приводить к отбраковке твэла по ТУ на шероховатость, где глубина впадины профиля не должна превышать 20 мкм. Поэтому интенсивность воздействующего излучения не должна превышать 28 кВт/см^2 или область облучения мишени должна иметь больший диаметр. Также необходимо использовать лазеры с более равномерным распределением излучения по сечению луча.

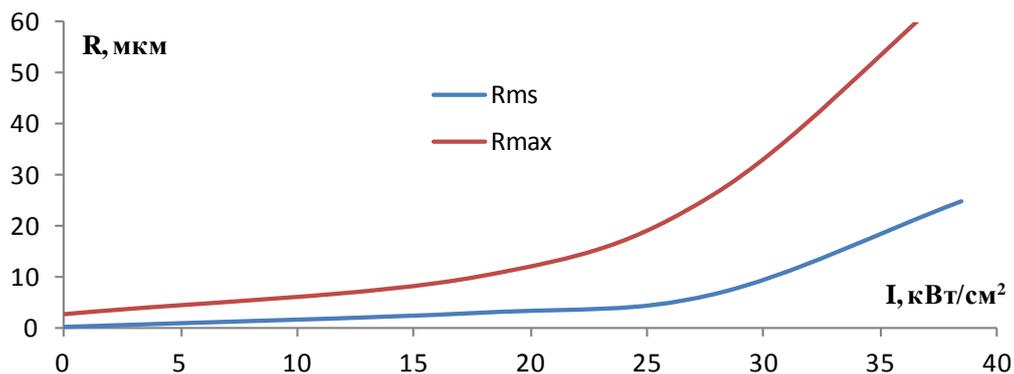


Рисунок 3.8 – Зависимость шероховатости (R_{ms}) и высоты профиля (R_{max}) от интенсивности лазерного излучения

На рисунке 3.9 приведены графики изменения среднеквадратичной шероховатости в зависимости от диаметра фокального пятна лазерного излучения при разной энергии лазерного импульса. Видно, что при уменьшении диаметра воздействия менее ~ 200 мкм шероховатость мишени нелинейно увеличивается при всех энергиях лазерного импульса.

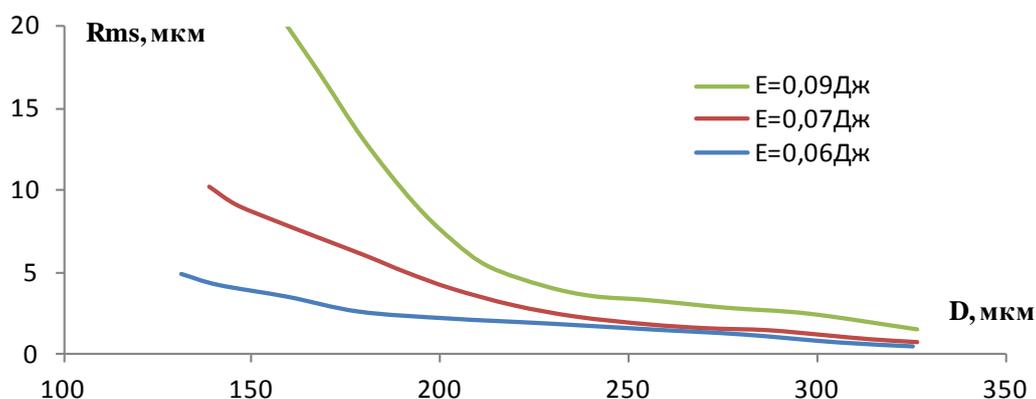


Рисунок 3.9 – Зависимость среднеквадратичной шероховатости от диаметра фокального пятна

Изменение шероховатости мишени после лазерной дезактивации поверхности зависит от интенсивности излучения и размера облучаемой площадки. Увеличение интенсивности лазерного излучения (длительность 1,5 мс, $\lambda = 1,06$ мкм) свыше ~ 30 кВт/см² приводит к резкому увеличению шероховатости стали ЧС-68 с глубиной впадины профиля более 30 мкм, а увеличение размера фокального пятна более ~ 200 мкм сопровождается уменьшением шероховатости с глубиной впадины профиля не превышающей 10 мкм.

3.3 Моделирование лазерного нагрева микрочастиц, фиксированных в сварном шве стали

Расплавленный сварочный шов может захватывать микрочастицы, ранее находившиеся на поверхности свариваемых металлов. Поэтому наиболее трудно удаляемое радиоактивное загрязнение, при сборке твэлов, возникает не на поверхности трубки, а в объеме сварного шва заглушки в виде включений микрочастиц мокс-топлива. При этом микрочастицы могут располагаться на разной глубине матрицы. Это значительно усложняет решаемую задачу, так как лазерное воздействие должно испарить с поверхности сварочного шва открытые «включения» при минимальном воздействии излучения на матрицу металла, в объеме которого могут находиться скрытые микрочастицы, содержащие радионуклиды.

Рассмотрение теплофизических свойств оксидов UO_2 , PuO_2 , ThO_2 показывает следующее: теплота плавления, теплота испарения, теплоемкость и теплопроводность между этими материалами отличаются незначительно. Значительные отличия наблюдаются в температурах плавления и испарения. UO_2 , PuO_2 , ThO_2 и железо имеют схожие теплоты плавления. Однако, по сравнению с оксидами, для железа: теплопроводность – больше в 10 раз, теплоемкость меньше в 2 раза, теплота испарения – больше до 3 раз.

Металл и микрочастица нагреваются за время действия лазерного импульса, а на границе металл-микрочастица происходит обмен теплом. На рисунке 3.10 показан механизм нагрева микрочастицы, которая полностью (а) и частично (б) находится в сварном шве. Микрочастицы нагреваются как за счет лазерного излучения, так и за счет теплообмена с мишенью, нагреваемой лазерным излучением. Очевидно, что при облучении длинными импульсами более тугоплавкие, чем металл частицы оксидов невозможно нагреть до температуры испарения при глубинах залегания от $\lambda/3$ мкм до $\sqrt{\alpha t}$, где α – коэффициент температуропроводности вещества, t – время воздействия лазерного импульса. Однако, за счет испарения мишени и формирования кратера возможно появление новых источников радиоактивности, если глубина кратера превышает расстояния от поверхности мишени до поверхности микрочастицы.

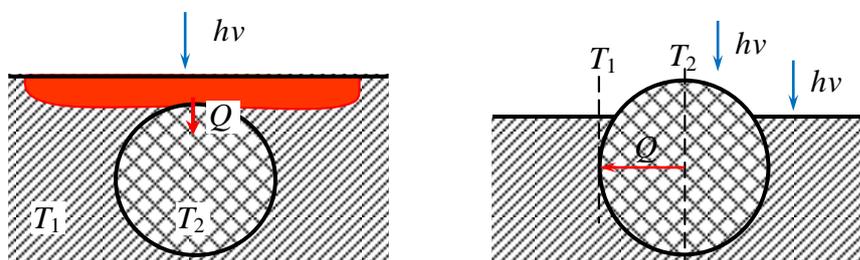


Рисунок 3.10 – Микрочастицы, нагреваемые за счет теплообмена (а) и лазерного излучения (б)

Принято считать, что глубина ослабления излучения в металле в «е раз» составляет $\lambda/3$. При нахождении микрочастицы на глубине менее 0,3 мкм возможен их непосредственный нагрев лазерным излучением с длиной волны 1,06

мкм и испарение. Модель такого нагрева приведена на рисунке 3.10, *b*.

Уравнение теплопроводности для описания температуры внутри микрочастицы, впаянной в металл (см. рисунок 3.10, *b*), может быть в виде

$$\frac{\partial T_2}{\partial t} = \frac{\lambda_T}{c \rho} \left(\frac{\partial^2 T_2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T_2}{\partial z^2} \right) + \frac{Q_{2v}}{c_2 \rho_2} - \frac{Q_{1v}}{c_1 \rho_1}, \quad (3.9)$$

где λ_T - коэффициент теплопроводности, Q_v - объемная плотность лазерного нагрева, Вт/м³.

Второе слагаемое справа связано с объемным нагревом микрочастицы, а третье – металлической матрицы. Для оценки возможности лазерной дезактивации сварного шва от объемного загрязнения необходимо решать дифференциальное уравнение (3.9).

Известны формулы для определения температуры лазерной мишени для некоторых предельных случаев. Например, в случае неподвижного лазерного луча задача нагрева трехмерным потоком миллисекундного импульса сводится к решению интеграла [131].

$$T = T_0 + \frac{A P}{\lambda_T \pi} \sqrt{\frac{\alpha}{\pi}} \int_0^{t_0} \frac{\exp\left(-\frac{x^2 + y^2}{4\alpha t} - \frac{z^2}{4\alpha t}\right)}{\sqrt{t}(4\alpha t + r^2)} dt, \quad (3.10)$$

где r - радиус пятна нагрева, $\alpha = \lambda/(c\rho)$, м²/с – коэффициент температуропроводности вещества, T_0 - начальная температура образца; A - коэффициент поглощения; $P = I_0 S$ - полная мощность потока энергии лазерного излучения, падающего на поверхность ($z = 0$); λ_T - коэффициент теплопроводности нагреваемого вещества.

В металл лазерное излучение проходит на глубину менее $\lambda/3$. Поэтому реализуются условия поверхностного нагрева. При длительности импульса 1-2 мс значительная часть тепла отводится внутрь металла. В этом случае температуру поверхностного слоя можно определять из формулы (при импульсном нагреве $r_0 \gg \sqrt{\alpha t}$, $r_0 = 0,2$ мм, $\sqrt{\alpha t} = 0,1$ мм) [132]

$$T = \frac{2 I_0 (1-R) \sqrt{\alpha t}}{\sqrt{\pi} \lambda_T} + T_H. \quad (3.11)$$

Распределение температуры внутри микрочастицы, при лазерном нагреве, можно считать равномерным из-за ее небольших размеров. Металл и микрочастица находятся в тесном контакте, а поэтому обмениваются теплом. Считаем, что максимальная температура не превышает температуры кипения. При этом оксиды имеют большую температуру плавления, меньшую теплопроводность и теплоемкость, чем металлы. Тепловой поток между металлом и внедренным в него микрочастицей можно определить из выражений:

$$Q = a S (T_p - T_s), \quad Q = \lambda_T \frac{(T_p - T_s)}{r_p}, \quad (3.12)$$

где Q – тепловой поток, Вт, λ_T – коэффициент теплопроводности, Вт/(м К), S - площадь контакта (теплообмена), T_s , T_p – температура металла и микрочастицы, a – коэффициент теплоотдачи, Вт/(м² К).

Этот переток тепла ограничивает скорость нагрева микрочастицы $Q = c m \Delta T_2$:

$$c_2 m_2 \Delta T_2 = \lambda_{2T} \frac{T_2 - T_1}{r_p}. \quad (3.13)$$

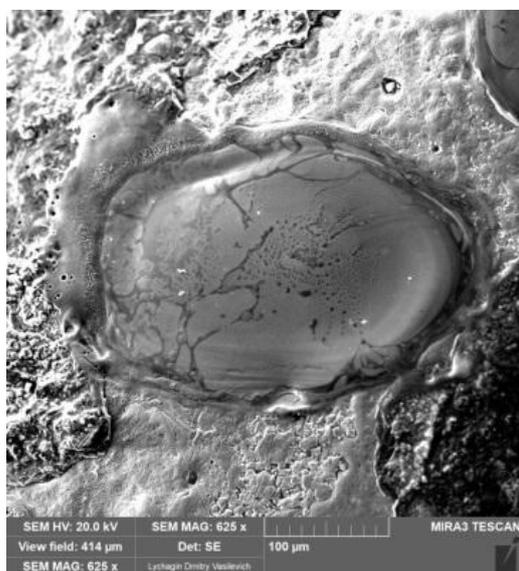
Образец сварного шва стали ЧС-68 с внедренными частицами топлива.

Известно, что эффективность лазерного воздействия связана с коэффициентом поглощения излучения веществом на рабочей длине волны лазера. UO_2 , PuO_2 и ThO_2 , CeO_2 имеют ширину запрещенной зоны до 4,4 эВ, что делает их прозрачными для излучения от видимой до средней ИК области спектра. Поэтому UO_2 , PuO_2 и ThO_2 , CeO_2 слабо поглощают излучение большинства серийно выпускаемых лазеров [133]. Однако мощное лазерное излучение может поглощаться дефектами кристалла, которые являются первоначально поглощающими центрами. При нагреве кристалла вокруг дефектов, поглощение излучения в локальной области лавинообразно возрастает [134]. Для стали коэффициент поглощения оптического излучения среднего ИК диапазона,

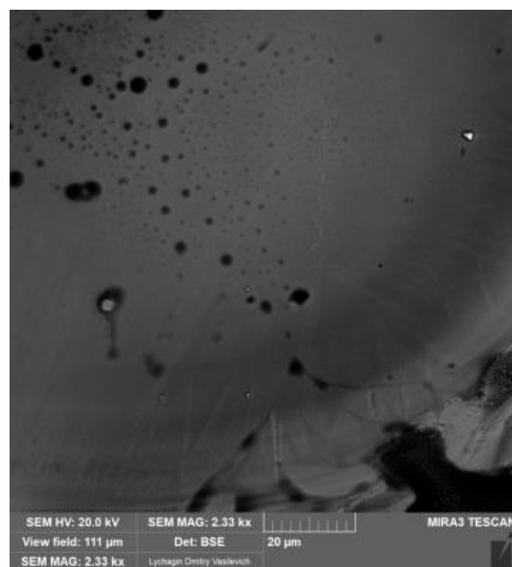
падающего перпендикулярно, как правило, не превышает 10%.

Для экспериментальных исследований были изготовлены образцы, содержащие сварной шов, сформированный на поверхности стали марки ЧС-68, с включенными в него частицами оксида церия. Размеры микрочастиц CeO_2 не превышали 6 мкм ($D_{50} = 2,0$ мкм). Для формирования испытуемого образца коммерчески доступный порошок CeO_2 смешивали со спиртом. Через 10 мин взвесь отбирали с помощью пипетки и наносили на поверхность металла. После испарения спирта, металл плавил с помощью аппарата для аргодуговой сварки. В результате в расплавленный металл попадали частицы CeO_2 . Облучение лазерным лучом проводили так, чтобы области лазерной абляции не перекрывались. При этом в область лазерного воздействия возможно попадание микрочастицы CeO_2 .

При лазерном воздействии на сварочный шов излучение фокусировали в пятно диаметром 0,2 мм. При этом интенсивность составляла 17,8-38,5 кВт/см². Формируемые при этом области с абляцией при двух увеличениях приведены на рисунке 3.11. Вокруг кратера сформировались участки застывшего расплава. Характер поверхности по контуру кратера позволяет предполагать, что из-за большой длительности импульса, испарение металла происходило из ванны расплава. При этом значительная часть расплава выплеснута из кратера. На изображении кратера видны инородные включения в виде темных и ярких областей.



a



b

Рисунок 3.11 – Микроизображение лазерного кратера на поверхности стали ЧС-68

Деактивация сварного шва твэла. Для поиска микрочастиц CeO_2 , в области лазерного воздействия, поверхность металла рассматривали при увеличении. Анализ областей абляции был проведен с помощью растрового электронного микроскопа Tescan MIRA 3LMU с энергодисперсионным микроанализатором с беззотным детектором ULTIM MAX 40. Результаты изучения одного из исследуемого участков представлены на рисунке 3.12. На рисунке 3.12, а показан фрагмент изображения кратера в режиме фазового контраста. На одном из участков видна частица в углублении размером около 2,5 мкм. Ее анализ показал, что это микрочастица оксида церия (рисунок 3.12 б, с).

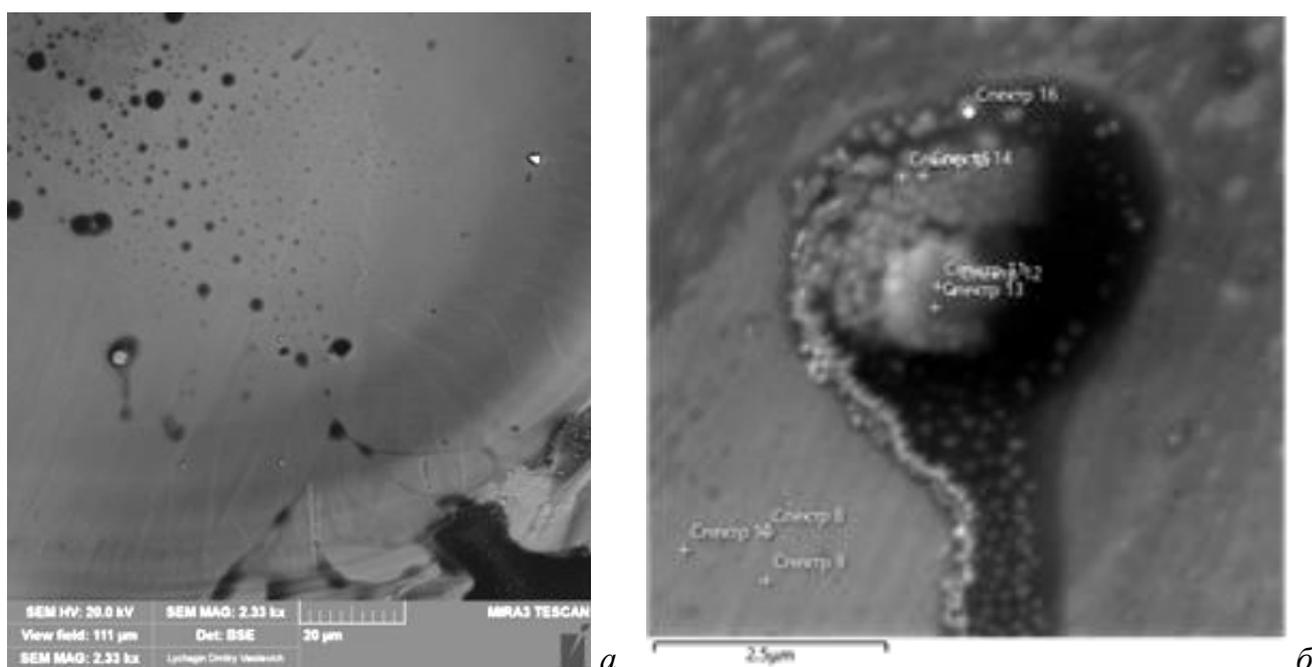


Рисунок 3.12 – Микроизображение лазерного кратера на поверхности стали ЧС-68 (а), изображение частицы (б) и энергодисперсионный спектр (с)

CeO_2 слабо поглощает излучение с длиной волны 1,06 мкм. В объеме микрочастицы CeO_2 , имеющей полупроводниковые свойства и частично внедренной в металл, лазерное излучение с длиной волны 1,06 мкм поглощается незначительно и проникает до раздела металл-микрочастица. Область контакта стали и CeO_2 можно рассматривать как слой дефектов. Поэтому значительная часть энергии луча поглощается на границе с металлом, контактируемым с микрочастицей оксида, в результате многократных переотражений. Поэтому нагреваются и испаряются металл и CeO_2 в области их контакта. В результате вокруг микрочастицы CeO_2 в металле образуется газовая полость, видная на рисунке 3.12, а. Частица CeO_2 размером около 1 мкм, при воздействии импульсами, не приводящими к порче поверхности твэлов, испарилась лишь частично. Необходимо иметь в виду, что вскрылась микрочастица, ранее находившаяся в металле, которая подвергалась лазерному воздействию лишь малую часть длительности импульса [114].

Моделирование температуры микрочастиц при лазерном облучении.

Для увеличения эффективности лазерной дезактивации необходимо испарить лишь частично внедренные микрочастицы, а металлическая матрица должна оставаться неизменной. Поэтому для «независимого» испарения стальной матрицы и оксидной микрочастицы требуется исключить влияние теплопроводности между микрочастицами путем уменьшения времени импульса лазерного излучения. Использование лазерного излучения в режиме модуляции добротности позволяет задавать длительность лазерного импульса до 100 нс, что ведет к пропорциональному увеличению интенсивности излучения. С учетом оптических свойств полупроводниковых микрочастиц и использования лазерного излучения в режиме модуляции добротности, рассмотрим динамику импульсного лазерного нагрева микрочастиц диаметром 0,5 мкм в поле излучения 10,6 мкм интенсивностью 25 МВт/см². Это позволит сформировать условия необходимого режима нагрева. Следует учитывать, что лазерное испарение, как правило, приводит к увеличению шероховатости поверхности мишени. Однако, поглощение лазерного излучения с длиной волны 10,6 мкм металлами снижается

до 10-20% и в случае использования пороговых режимов лазерной абляции для системы полупроводниковая микрочастица – стальная матрица, шероховатость металла пропорционально уменьшится, по сравнению с воздействием излучения лазера на неодиме.

Теплофизические параметры оксидов лантаноидов и актиноидов, приводимые различными авторами, отличаются. Обобщая литературные данные можно утверждать, что оксиды CeO_2 , ThO_2 , PuO_2 , UO_2 имеют близкие теплофизические и оптические свойства [135], а PuO_2 имеет значительно меньшую температуру испарения, чем CeO_2 , ThO_2 , UO_2 . На рисунке 3.13 приведена зависимость теплоемкости (C) от температуры (T) для стали, CeO_2 , ThO_2 , PuO_2 , UO_2 в соответствии с обобщенными литературными данными для оксидов лантаноидов и актиноидов [128, 129]. Видно, что теплоемкости различных материалов зависят от температуры.

При малых интенсивностях лазерного излучения рассматриваемые оксиды прозрачны в области 0,4 – 9,0 мкм. При увеличении интенсивности возможно нелинейное увеличение поглощения, инициируемое дефектами кристаллической структуры. Поэтому возможен нагрев полупроводниковых кристаллов с помощью излучения 1,06 мкм.

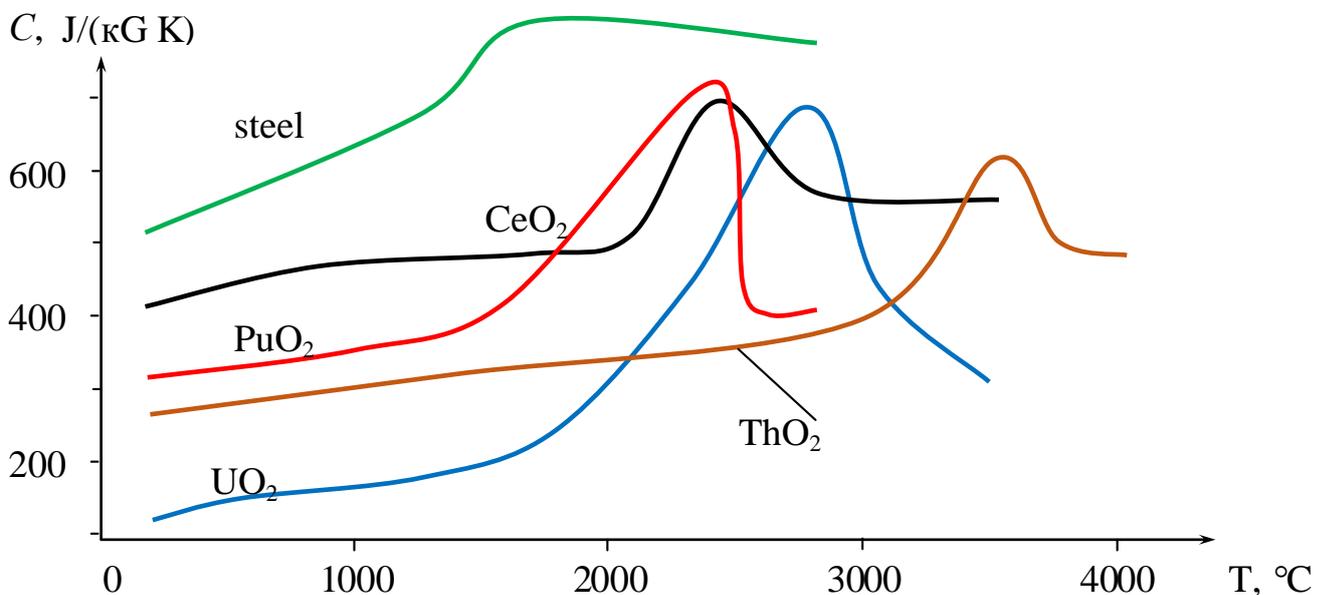


Рисунок 3.13 – Температурная зависимость теплоемкости использованных материалов

При нагреве матрицы в режиме свободной генерации Nd-лазера теплопроводность мишени (стали) существенно влияет на нагрев внедренных в мишень микрочастиц до температуры испарения стали и ограничивает нагрев полупроводниковых микрочастиц температурой испарения стали (2860°C). При этом микрочастицы PuO₂ начинают испаряться (2800°C) раньше ванны расплава стали. Вероятность обнажения микрочастиц, находившихся в объеме матрицы, уменьшается из-за возможного движения ванны расплава стали.

На длине волны 10,6 мкм поглощение металлами излучения не превышает 20%, а поглощение полупроводниковыми микрочастицами возрастает до 90%. Понятно, что для излучения 10,6 мкм, при таких соотношениях теплоемкостей и коэффициентов поглощения микрочастицы ($\varepsilon_d = 0,8 \div 0,9$) нагреваются быстрее, чем сталь ($\varepsilon_m = 0,1 \div 0,2$). Так как большая часть энергии импульса выделяется за время 30-50 нс, то влиянием теплопроводности можно пренебречь. В этой ситуации матрица и внедренные микрочастицы испаряются «независимо». Поэтому микрочастицы могут испариться полностью. Однако, испарение стали приведет к «обнажению» новых микрочастиц из объема мишени. Также следует учитывать, что излучение CO₂ лазера нагревает металл на глубину до 3,5 мкм. Также, для упрощения расчетной модели процесс передачи тепловой энергии между микрочастицами не учитывался. Поэтому расчет времени нагрева производился для отдельной микрочастицы.

Рассмотрим динамику температуры микрочастиц в поле излучения CO₂-лазера. За время t действия лазерного излучения микрочастица получает энергию $E_d = \varepsilon_d I_0 t \pi r_d^2$, а стальная матрица $E_m = \varepsilon_m I_0 t \pi r_f^2$. Здесь ε - коэффициент поглощения, I - интенсивность излучения, t – время действия лазерного импульса, r_d - радиус частицы, r_f - радиус фокального пятна лазера.

Поглощаемая энергия приводит к нагреву в поле лазерного излучения микрочастицы $E_d = C_d \rho_d \frac{4}{3} \pi r_d^3 \Delta T_d$, мишени - $E_m = C_m \rho_m \pi r_f^2 0,33\lambda \Delta T_m$.

Отсюда определим выражение для нагрева микрочастиц и мишени [115]:

$$\Delta T_d = \frac{\varepsilon_d I_0 t \pi r_d^2}{C_d \rho_d \frac{4}{3} \pi r_d^3} = \frac{3 \varepsilon_d I_0 t}{4 C_d \rho_d \pi r_d} - \text{микрочастица}, \quad (3.14)$$

$$\Delta T_m = \frac{\varepsilon_m I_0 t \pi r_f^2}{C_m \rho_m \pi r_f^2 0,33 \lambda} = \frac{\varepsilon_m I_0 t}{C_m \rho_m 0,33 \lambda} - \text{мишень}. \quad (3.15)$$

После подстановки постоянных величин получаем расчетные формулы

$$\Delta T_d = 2,45 \cdot 10^{10} \frac{t}{C_d} - \text{для микрочастицы}, \quad (3.16)$$

$$\Delta T_m = 0,19 \cdot 10^{10} \frac{t}{C_m} - \text{для мишени}. \quad (3.17)$$

Для сопоставления скоростей нагрева микрочастиц и мишени проводили оценку температуры, с разрешением по времени 1 нс в пренебрежении теплопроводности по следующему алгоритму. Изменение температуры вычисляли ступенчато от комнатной температуры по формуле (3.16). На последующих этапах вычисления проводили от предыдущей температуры. На каждом этапе расчета использовали теплоемкость в соответствии с полуэмпирическими уравнениями зависимости теплоемкости от температуры для оксидов лантаноидов и актиноидов [129].

На рисунке 3.14 приведены расчетные графики изменения температуры микрочастиц стали и оксидов диаметром 0,5 мкм при воздействии лазерным импульсом длиной волны 10,6 мкм, интенсивность 25 МВт/см². При достижении температуры плавления, фазовый переход требует затрат энергии (затрачивается теплота плавления) и рост температуры испытывает задержку на время, необходимое для компенсации лазерным излучением этой величины. Участок, параллельный оси ОХ, показывает время, необходимое для компенсации энергии, затрачиваемого на плавление. Например, при интенсивности излучения 25 МВт/см² время нагрева изолированной стальной микрочастицы диаметром 0,5 мкм для полного плавления составляет 7,02 нс.

Следует иметь в виду, что приводимые на рисунке 3.15 кривые

приближенны, так как получены для равновесных условий. Процесс импульсного лазерного нагрева твердых тел, несомненно, является нестационарным процессом. Поэтому изменение температуры в точке плавления будет совсем другим. Необходимо учитывать возможность перегрева при лазерном нагреве твердых тел в точках фазового перехода. Эти упрощения расчетной модели ведут к неточности оценки времени нагрева до температуры кипения. Также следует учитывать, что температуры фазовых переходов микрочастиц и объемных твердых тел отличаются. В справочниках приводятся данные для объемных материалов.

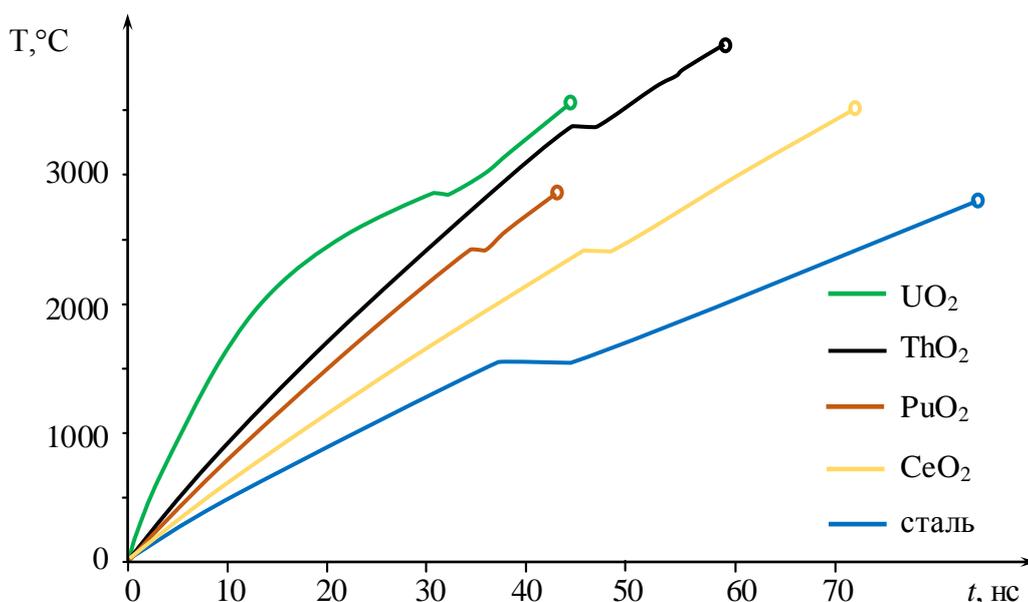


Рисунок 3.14 – Температура изолированных микрочастиц CeO_2 , UO_2 , PuO_2 , ThO_2 и стали при облучении импульсным лазерным излучением с интенсивностью 25 МВт/см^2 на длине волны $10,6 \text{ мкм}$

Из графиков нагрева (рисунок 3.15) в поле излучения CO_2 -лазера интенсивностью 25 МВт/см^2 видно следующее. Стальная микрочастица нагревается значительно медленнее оксидов и за время импульса CO_2 -лазера (50 нс) не нагревается до температуры кипения. Можно предположить, что стальная мишень будет нагреваться ещё медленнее. Оксид церия достигает температуры кипения позже всех оксидов и за время 50 нс также не нагревается

до температуры кипения. Изолированные микрочастицы UO_2 и PuO_2 диаметром 0,5 мкм в поле лазерного излучения CO_2 -лазера одновременно нагреваются до точки кипения за время 44 нс. Эти оксиды составляют мокс-топливо. За время 60 нс возможно испарение микрочастиц UO_2 , ThO_2 , PuO_2 в поле излучения CO_2 -лазера. Кривые нагрева оксидов ограничены температурой кипения (кружок на рисунке 3.15), а сталь не нагревается до температуры кипения [114].

3.4 Анализ метода лазерной очистки сварного шва трубок твэла

Частицы оксидного топлива, являясь полупроводниками, прозрачны к длине волны 1,06 мкм. Поэтому, дезактивация поверхности твэлов $YAG:Nd$ лазерным излучением целесообразно проводить импульсами в термомеханическом режиме за счет действия инерционных сил. Дезактивацию лазерным излучением с длиной волны 1,06 мкм эффективно применять к поверхностному снимаемому загрязнению твэлов. Данный способ может эффективно применяться для дезактивации торца твэла непосредственно после загрузки трубы топливным столбом, а также перед операцией герметизации для обеспыливания и дезактивации торца трубы и верхней заглушки твэла.

Поверхностное неснимаемое загрязнение целесообразно удалять излучением, эффективно поглощающим рабочую длину волны лазера для радиоактивных частиц и отражающее для подложки. В зависимости от гранулометрического состава исходного сырья таблеток ядерного топлива, размера образовавшихся топливных частиц при ведении технологического процесса, необходимо использовать лазерное излучение соответствующей длины волны. Исключая область прозрачности диапазона 0,4-9,0 мкм для топливных частиц оксидного ядерного топлива, возможно применение УФ импульсного лазерного излучения. Использование $XeCl$ эксимерного лазерного излучения с длиной волны 308 нм возможно для частиц, технология производства которых обеспечивает гранулометрический состав порошка с частицами размером до 0,1 мкм. Поэтому лазерное излучение УФ области эффективно при использовании

в технологии традиционного топлива из UO_2 , соответствующего гранулометрического состава [13], до проведения операции грануляции порошка. Технология изготовления порошка из PuO_2 предполагает получение частиц, превышающих размер 1 мкм. Поэтому для удаления частиц, содержащих PuO_2 , целесообразно использование CO_2 -лазера, работающего в средней ИК области на длине волны 10,6 мкм.

Увеличение качества дезактивации возможно при использовании в первом импульсе лазерного импульса с длиной волны 1,06 мкм, в термомеханическом режиме удаления частиц. За счет воздействия инерционных сил на радиоактивные частицы топлива, а также возникновения нелинейных эффектов поглощения происходит их удаление с поверхности, оставляя только фиксированные частицы топлива. Вторым импульсом или серией импульсов лазерного излучения с длиной волны 10,6 мкм обеспечивается селективное испарение фиксированных топливных частиц из поверхности сварного шва с последующим удалением продуктов абляции в специальную вытяжную вентиляцию. Поэтому наиболее эффективным решением для дезактивации сварного шва твэла и неснимаемого загрязнения, будет использование комбинации импульсного лазерного излучения Nd и CO_2 лазеров [122].

3.5 Выводы по главе 3

1. Экспериментально показано, что при воздействии излучения лазера на неодиме интенсивностью от 17,8 до 27,8 кВт/см² импульсами в режиме свободной генерации (длительность 1,5 мс, $\lambda = 1,06$ мкм) удаление микрочастиц оксида урана, не приводит к формированию дефектов на поверхности трубки, приводящих к отбраковке твэлов [115].

2. Дезактивация лазерными импульсами Nd-лазера эффективна для частиц, удерживаемых силами Ван-дер-Ваальса, имеющих характер снимаемого поверхностного загрязнения.

3. Моделирование показывает, что имеются благоприятные условия для лазерной дезактивации сварного шва твэла от микрочастиц мокс-топлива с помощью излучения СО₂-лазера ($\lambda = 10,6$ мкм, длительность 50 нс), так как микрочастицы UO₂ и PuO₂ одновременно нагреваются до точки кипения, а стальная матрица нет [115].

4. При лазерной дезактивации сварных швов от частиц мокс-топлива оптимально использовать комбинацию лазерных импульсов двух длин волн: 1,06 и 10,6 мкм в до испарительном и испарительном режиме соответственно.

ГЛАВА 4. РАЗРАБОТКА МЕТОДОВ КОНТРОЛЯ ПРОЦЕССА ЛАЗЕРНОЙ ОЧИСТКИ ПОВЕРХНОСТИ МЕТАЛЛОВ ОТ ДИСПЕРСНЫХ ЧАСТИЦ

Очистка поверхности от радионуклидов импульсным лазерным излучением сопровождается различными физико-химическими процессами. Образование оптического пробоя, плазмы, парогазового облака и рассеяние лазерного импульса, одни из немногих эффектов, которым необходимо уделить внимание во время проведения лазерной дезактивации. Оптимизация или контроль вторичных эффектов лазерной абляции, способствует увеличению эффективности и снижению энергозатрат процесса. В главе рассмотрены процессы и методы управления нуклеацией, для оптимизации ослабления лазерного импульса. По вторичным эффектам абляции – изменения плазменной частоты и рассеяния на дисперсных частицах в парогазовом облаке, предложен качественный контроль степени дезактивации. Результаты исследований опубликованы в статьях [137 - 141] и обсуждались на конференциях [142 - 151], получен патент Российской Федерации [152].

4.1 Анализ процессов, протекающих при формировании аэрозоля, возникающего при лазерной абляции металлов

Лазерная абляция связана с разогревом объема вещества до температуры кипения и выше, результатом которого является удаление вещества с поверхности твердого тела. В зависимости от режимов лазерного облучения, процессы выноса вещества в результате абляции будут переходящими, с преобладанием удаления вещества в расплаве или в парогазовом облаке. Процессы нагрева и испарения сопровождаются появлением пузырьков насыщенного пара в центрах поглощения ванны расплава, вызванных микродефектами на поверхности, при относительно небольших пороговых значениях интенсивности и вытеснением расплава избыточным давлением паров. На рисунке 4.1 представлены изображения вынесенного расплава на края эрозионного кратера, образованного в результате лазерной абляции наносекундным Nd:YAG лазером стали ЧС-68.

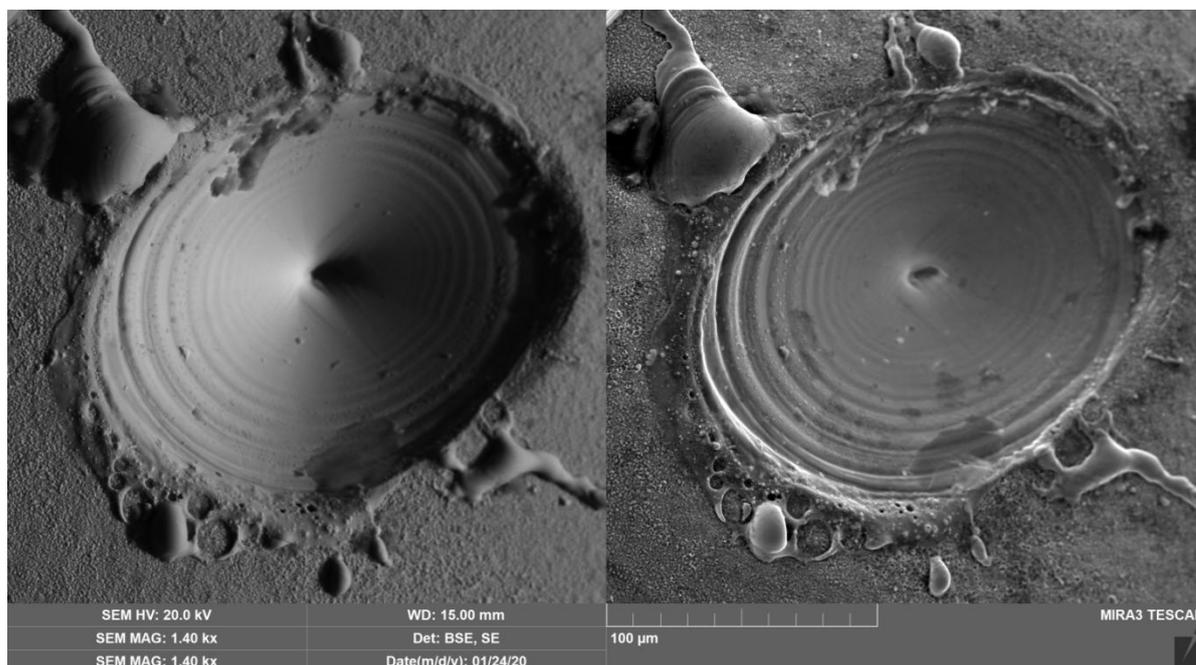


Рисунок 4.1 – Вынос расплава на края эрозионного кратера

При использовании коротких импульсов и определенной пороговой энергии лазерного луча, возможна абляция в испарительном режиме. С уменьшением времени воздействия лазерного импульса, уменьшается объем прогретого материала и выброс вещества в виде расплава. Возможно использование лазерной абляции только в испарительном режиме [136]. В основном, при быстром нагреве, испарение вещества начинается при температурах выше температуры кипения. Поэтому вынос вещества происходит в парогазовое облако, состоящее из продуктов абляции. Образование облака аэрозоля в результате абляции проходит за время до 5 мкс, представляет сложный многостадийный процесс [153]. Испарительный режим дезактивации сопровождается образованием частично интерферирующих ударных волн, которые, происходят из-за мгновенного сжатия окружающего газа во время начальной стадии выброса материала быстрым нагревом и испарением вещества, образуя первую и вторую ударную волну соответственно. При воздействии лазерного излучения на газообразное облако испарившегося материала, происходит ионизация газа, образование затравочных электронов и электронной лавины в ускоряющем поле лазерного луча, поэтому возникает пробой над поверхностью мишени и образование третьей ударной

волны – волны пробоя. Интерференция ударных волн в газовом облаке интенсифицирует процессы нуклеации и конденсации, рассеивая аэрозольные частицы. В результате преобразований в газовом облаке, частицы субмикронного размера оседают в пределах границ эрозионного кратера, наночастицы улечиваются. Сформированные в результате лазерного испарения нанодисперсные микрочастицы распространяются в атмосферном воздухе, образуя достаточно устойчивую взвесь. В основном, этот биологически активный аэрозоль плохо задерживается на фильтрах и выбрасывается в атмосферу.

Таким образом, лазерная дезактивация внешних поверхностей сопровождается различными способами и стадиями выноса вещества, в зависимости от режимов лазерной абляции. Размеры частиц варьируются от микронного до нанометрового диапазона. Их плотность и распределение зависят от вещества, времени и режимов лазерного облучения.

4.2 Анализ процессов, связанных с прохождением лазерного излучения через аэрозоль

Газовое облако и плазма, сформированные в результате лазерной абляции, распространяются от поверхности с большой скоростью. Наличие в газе взвешенных частиц приводит к дополнительному поглощению лазерного излучения, способное ионизировать среду и образовывать плазму [154]. Поэтому приповерхностное газовое облако определяет условия прохождения лазерного излучения к мишени. В случае однократного лазерного импульса, газовое облако особо влияет на условия прохождения излучения длинных лазерных импульсов, а также для лазеров, облучающих в режиме свободной генерации и непрерывных лазеров. При облучении короткими и ультракороткими лазерными импульсами, газовое облако может влиять на прохождение высокочастотных (по периодичности) лазерных импульсов.

В парогазовом облаке, происходит поглощение излучения на разных стадиях его формирования. На атомарных уровнях поглощение эффективно протекает за счет дискретных процессов коротковолнового излучения. С увеличением длины волны лазерного излучения, ослабление излучения возрастает за счет рассеивания на молекулах. Поглощение излучения происходит на мельчайших капельках конденсированной фазы (кластеров). Аэрозоли в парогазовом облаке являются предметом ослабления для всех длин волн лазерного излучения.

Концентрация и гранулометрический состав аэрозольного облака влияют на условия прохождения лазерного излучения на мишень. Например, из-за того, что более мелкие частицы имеют большее суммарное геометрическое сечение, чем такая же по весу крупная. Для оптимизации прохождения лазерного излучения до мишени, актуальны исследования образования частиц и влияния на их размеры. Поэтому необходим поиск методов управления размерами образующихся из паров капель и дисперсных частиц.

4.3 Процессы нуклеации после воздействия лазерного излучения

В исследованиях проведенных нами ранее установлено, что при использовании Nd:YAG лазерного излучения ($\lambda \sim 1,06$ мкм) длительностью импульсов 1,5 мс или 15 нс для сверления отверстий в графите толщиной 2-3 мм и латуни толщиной 0,3 мм при атмосферном давлении в воздухе, наличие постоянного магнитного поля индукцией 30-180 мТл увеличивает скорость сверления сквозного отверстия [140]. Отверстие в графите, полученное в результате воздействия импульсного лазерного излучения, имело коническую полость, представленную на рисунке 4.2. При этом, наличие магнитного поля не влияет на форму полости отверстия. Воздействие лазерными импульсами на графит проводили в воздушной атмосфере, из-за этого при испарении углерод окислялся в полном объеме и дисперсная фаза (сажа) не регистрировалась.

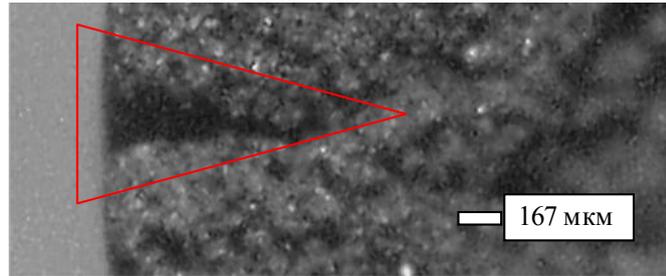


Рисунок 4.2 – Разрез полости в графите (увеличение 60 \times , $H=0,1$ Тл)

Расчеты показывают, что действие на мишень одного импульса лазерного излучения при наличии постоянного магнитного поля 0,1 Тл, испаряет графит в среднем количестве массой 14,8 нг, а без магнитного поля массой 8,87 нг. Видно, что количество испарившегося графита увеличилось до 1,67 раз [141]. Однако, скорость сверления отверстия не зависит от величины магнитного поля в диапазоне 30-180 мТл. Дальнейшие исследования не позволили обнаружить зависимость теплопроводности графита от магнитного поля. Поэтому скорость испарения графита импульсным Nd:YAG лазерным излучением, скорее всего, связана не с графитом, а с уменьшением времени окисления паров углерода в воздухе. Уменьшение времени переходных процессов в парогазовом облаке, увеличивает долю лазерного излучения, попадающую на мишень.

Фазовый переход. Переходные процессы в многокомпонентной парогазовой системе начинается с ее охлаждения и появления ядер конденсации. Формирование центров конденсации и дисперсных частиц начинается с компонент, имеющих более высокую температуру фазового перехода. При этом в зависимости от соотношения скоростей диффузии атомов к поверхности, нагрева частиц за счет энергии фазового перехода и скорости потерь энергии наночастицей за счет различных процессов нуклеации, определяется скорость увеличения размера наночастиц.

Также возможно соединение нескольких частиц, при контакте отдельных наночастиц. При этом выделяется энергия, которая интенсифицирует процесс формирования нескольких кристаллитов в однородную систему. Для описания

процесса коагуляции углеродных частиц в газовой фазе при температурах 470°C-530°C используются константы представленные в работе [155].

Энергия фазового перехода, при образовании нейтрального кластера, в котором можно явно выделить поверхность, определяется по формуле [156]

$$\Delta G_n = 4\pi r^2(n)\sigma + n(\mu_c - \mu_v), \quad (4.1)$$

где $r(n)$ - радиус капли из n атомов, σ - энергия поверхностного натяжения капли, μ_c , μ_v - химические потенциалы атомов (молекул) в жидкой и газовой фазах.

Фазовый переход сопровождается изменением температуры дисперсных частиц в каждый момент времени. Балансом энергии выделенной при фазовом переходе и потерянной при теплообмене с окружающей средой, определяется температура дисперсных частиц. Уравнение 4.2 описывает изменение температуры дисперсной частицы во времени:

$$\frac{dT}{d\tau} = E_t \frac{dn}{d\tau} \frac{1}{m_d c}, \quad (4.2)$$

где n – поток атомов газообразного вещества на одну наночастицу, m_d – масса наночастицы, E_t – энергия фазового перехода, приходящийся на 1 атом [Дж/атом], c – удельная теплоемкость при температуре кипения.

Частота флуктуационного образования ядер конденсации за счет изменения плотности пара зависит от температуры и устанавливается за время 10^{-9} с [157]. Из теории флуктуаций следует, что скорость образования ядер конденсации новой фазы в единице объема за единицу времени [158]:

$$\frac{dN}{d\tau} = \frac{\gamma}{\rho} \sqrt{\frac{2m\sigma}{\pi}} \left(\frac{P}{kT}\right)^2 \exp\left(-\frac{\Delta G}{kT}\right), \quad (4.3)$$

где N - счётная концентрация ядер конденсации, τ - время, γ – коэффициент десублимации; ρ - плотность конденсированного вещества, m – масса молекулы; σ - сила поверхностного натяжения капли, P – полное давление в газовой фазе, k – постоянная Больцмана; T – температура парогазовой смеси.

Работа образования кластера для пара со степенью пересыщения S равна

$$\Delta G = \frac{16\pi m^2 \sigma^3}{3\rho^2 k^2 T^2 (\ln S)^2}. \quad (4.4)$$

Поверхностную энергию σ твердой дисперсной частицы можно определить с помощью уравнения [159]:

$$\sigma = \frac{\Delta H - RT}{(M : \rho)} \frac{\Delta n}{n} h, \quad (4.5)$$

где ΔH – изменение энтальпии при фазовом переходе, кДж/моль; R – универсальная газовая постоянная; n – координационное число атома в объеме кристалла; Δn – количество отсутствующих химических связей выделенного атома, находящегося на поверхности, по сравнению с внутренними атомами; h – высота одного слоя молекул, м; M – молярная масса, г/моль; ρ – плотность конденсированного вещества, г/см³.

Гомогенная нуклеация. Появление ядер конденсации начинается при содержании пара выше некоторой критической концентрации. При этом в зависимости от температуры и степени пресыщения в однокомпонентном пересыщенном паре изменяется скорость формирования ядер конденсации (число ядер конденсации, образующихся за единицу времени в единичном объеме, см. формулу (4.3)) [151, 160]. Энергия, необходимая на формирование кластера атомов из пара, имеющего степень пересыщения S и массу m , определяется формулой (4.4).

Движение атомов (ионов) в паровом облаке сопровождается их адсорбцией на поверхности твердого тела. Время «жизни» атома на поверхности твердого тела в адсорбированном состоянии определяется по формуле [161]

$$t_{ad} = \tau_0 \exp\left(\frac{\Delta E_{ad}}{k T}\right), \quad (4.6)$$

где τ_0 – период колебания атома (иона) при заданной температуре T в конденсированном состоянии, ΔE_{ad} – энергия адсорбции, k – постоянная Больцмана.

При медленной нуклеации, малая часть падающих атомов пара на поверхность дисперсных частиц сразу формируют химическую связь. Большая

часть адсорбированных атомов не может образовать ковалентную связь и может диффундировать по поверхности дисперсной частицы. Если за время «жизни» атома t_{ad} , не образовалась химическая связь между адсорбированным атомом и поверхностью твердого тела, то рассматриваемый атом испаряется - покидает поверхность дисперсной частицы.

В результате скорость роста наночастиц зависит от соотношения частоты столкновения атомов из газовой фазы с образованием ковалентной связи и суммарной частоты столкновений с поверхностью растущей наночастицы.

Возможны два предельных режима процесса нуклеации, которые зависят от скорости охлаждения. В диффузионном режиме, когда формирование конденсированной фазы ограничивается процессом массопереноса, скорость нуклеации можно описывать с помощью уравнения стефановского потока для одномерной диффузии [162]. В кинетическом режиме, когда скорость процесса определяется стадией фазового перехода на поверхности частицы, нуклеацию можно описывать обобщенным топохимическим уравнением.

Время достижения стационарного количества ядер конденсации можно оценить по формуле [163]

$$\tau_s = \frac{25(n^*)^2 \sqrt{2\pi m k T}}{4\pi \rho (r^*)^2}, \quad (4.7)$$

где r^* - критический радиус ядра конденсации, n^* – количество атомов в кластере.

Оценки по формуле (4.7) показывают, что в большинстве проводимых экспериментальных исследований нуклеации паров (при отсутствии отраженных от кластеров атомов) время установления стационарного состояния составляет 10^{-6} - 10^{-5} с.

Нуклеация сопровождается непрерывным формированием и распадом ядер конденсации. Поэтому формирующиеся кластеры состоят из различного количества атомов. Распределение кластеров по их числу и размерам в зависимости от температуры при гомогенном формировании представлено в статье [164].

Вероятность контакта наночастиц и возможность их коагуляции

увеличивается в турбулентном потоке газа. Интенсивная коагуляция дисперсных частиц приводит к образованию рыхлых конгломератов гетерогенной среды. Поэтому функция распределения кластеров при нуклеации в турбулентном потоке газа смещается в сторону частиц с большим размером [155].

Гетерогенная нуклеация. Скорость гетерогенной нуклеации, в соответствии с теорией Флетчера, равная числу критических ядер конденсации, образующихся в единицу времени на поверхности одной затравочной частицы радиусом R из другого вещества, определяется выражением [165]

$$\frac{dN}{dt} = 4\pi R^2 10^{25} \exp\left(-\frac{2\pi^{*2}\sigma_g}{3kT} f(m, x)\right), \quad (4.8)$$

где σ_g – энергия поверхностного натяжения поверхности раздела между вновь образующейся жидкостью и газом, $f(m, x)$ – множитель, определяемый геометрическим фактором.

Скорость увеличения числа атомов в наночастице, в случае если при нуклеации преобладает механизм поверхностной конденсации (кинетический режим), определяется по формуле [166]

$$\frac{dn}{dt} = N_R n^{2/3} r_w^2 \sqrt{\frac{8\pi kT}{m}}. \quad (4.9)$$

Здесь r_w - радиус Вигнера-Зейтца, N_R - концентрация в газовой фазе конденсирующихся атомов (молекул), n - число атомов (молекул) в наночастице.

Радиус Вигнера-Зейтца определяется плотностью ρ макроскопической системы [166]

$$r_w = \sqrt[3]{\frac{3m}{4\pi\rho}}. \quad (4.10)$$

Известна приближенная формула для определения числа атомов в наночастице за время её роста t , в пренебрежении испарения атомов [167]

$$n_{fin} = \left(\frac{8\pi kT}{m}\right)^{3/2} \frac{N_R^3}{27} t^3 r_w^2 \quad (4.11)$$

Уравнение для скорости роста кластера в диффузионном режиме [166]

$$\frac{dn}{dt} = 4\pi N_R n^{1/3} r_w \frac{3\sqrt{\pi k T} \lambda}{8\sqrt{2\mu}}, \quad (4.12)$$

где $\mu = \frac{m_g m_v}{m_g + m_v}$ - приведенная масса атомов пара и газа, λ - длина свободного пробега атомов пара.

4.3.1 Исследование влияния магнитного поля на процесс нуклеации

Нуклеация в магнитном поле. Скорость охлаждения при нуклеации в паровом облаке значительно влияет на количество атомов в кластере и распределение функции дисперсионных частиц по размерам. В условиях нуклеации с высокой скоростью охлаждения, система имеет большую степень пересыщения, что способствует непрерывному формированию новых ядер конденсации. Поэтому в конденсированной фазе одновременно будут находиться дисперсные частицы разных размеров. При этом дисперсные частицы не могут массово достигать больших размеров и будет превалировать мелкодисперсная компонента. Очевидно, что для получения более крупных частиц с заданным распределением по размерам необходимо управлять процессом нуклеации. Например, если критическое пересыщение, необходимое для появления ядер конденсации существует лишь в начальный момент охлаждения, то в последующем будут расти, в основном, уже имеющиеся частицы. При этом с высокой вероятностью весь пар конденсируется на возникших в начале процесса дисперсных частицах. Поэтому, при уменьшении степени пересыщения во времени, формируются более крупные частицы, а функция распределения по размерам частиц конденсированной фазы будет иметь более узкое распределение по размерам, чем в случае поддержания степени пересыщения на одинаковом высоком уровне.

Образование ядер конденсации снижает концентрацию паров в облаке, что приводит к уменьшению степени пересыщения пара. Поэтому с течением времени нуклеация сопровождается замедлением скорости формирования новых ядер

конденсации. Дальнейшее медленное охлаждение системы, способствует уменьшению концентрации вещества газовой фазы из-за продолжающегося роста уже имеющихся ядер конденсации и кластеров. Соответственно функция распределения дисперсных частиц по размерам смещается в сторону больших частиц, так как новые наночастицы не появляются.

Известно, что принцип Паули является необходимым условием для формирования ковалентной связи между двумя атомами [168, 170]. При этом требуется сохранение суммарного спина. Как при образовании молекул в жидкости, так и образовании химических связей на поверхности дисперсных частиц, два атома реагента длительно находятся в контакте. Поэтому этими процессами можно управлять с помощью внешнего слабого постоянного магнитного поля. Формирование ковалентной связи возможно лишь в случае, если время сорбированного состояния атома превышает время триплет-синглетной конверсии спиновых пар неспаренных электронов.

Внешнее слабое магнитное поле уменьшает время триплет-синглетной конверсии спиновых пар неспаренных электронов для формирования химической связи [171]. Поэтому во всех случаях внешнее магнитное поле способствует ускорению процесса формирования ядер конденсации и уменьшению коэффициента десублимации. В результате, имеющееся в газовой фазе вещество распределяется между большим количеством ядер конденсации зародившихся «одновременно» за короткий период после начала нуклеации. Более равномерная по объему конденсация паров (из-за большего количества ядер конденсации) ограничивает появление аномально крупных частиц (ограничение со стороны крупных частиц). Поэтому функции распределения дисперсных частиц по размерам обрезается также со стороны крупных частиц. В результате формируется конденсированная фаза, имеющая более узкий диапазон размеров, чем в нулевом магнитном поле.

Процессы в магнитном поле. Коэффициент десублимации, находящийся в диапазоне $0 \div 1,0$, определяет долю молекул (атомов) из газовой фазы, оседающих на поверхности конденсированной частицы из общего количества падающих

атомов (молекул).

Коэффициент десублимации γ в уравнении (4.3) учитывает соотношение времен триплет-синглетного перехода и времени «жизни» атома в адсорбированном состоянии. На рисунке 4.3 приведена схема модели роста дисперсных частиц. Атомы из газовой фазы, имеющие неспаренные электроны, сорбируются на поверхности частицы и формируют спиновые пары. Схема иллюстрирует образование спиновых пар между атомами твердого тела (микрочастица) и адсорбированными атомами [140].

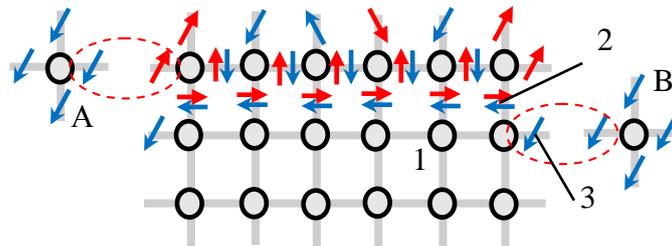


Рисунок 4.3 – Модель роста дисперсных частиц. 1 - атомы, 2 – спаренные, 3 – неспаренные спины

Принцип Паули накладывает условия для формирования ковалентной связи не только между двумя атомами, но и для образования молекул и наночастиц. Поэтому процессами нуклеации можно управлять путем воздействия внешним магнитным полем [140].

Атом «А» на рисунке 4.3 сразу после адсорбции во внешнем магнитном поле переходит в триплет-синглетное состояние и объединяется с твердым телом. Атом «В» не может сразу образовать ковалентную связь и начинает диффундировать по поверхности твердой фазы, пока спиновая пара не испытает триплет-синглетный переход. Если время диффундирования сорбированного атома превышает время «жизни», определяемое уравнением 4.6, атом испаряется.

Время триплет-синглетной конверсии изотопных модификаций молекул

$$\Delta\nu = \frac{1}{t_{\text{кон}}} = \frac{\mu}{h} [g_1(H + a_1) - g_2(H + a_2)]. \quad (4.13)$$

Здесь μ - магнетон Бора, h - постоянная Планка, g - g-фактор, a -

постоянная сверхтонкого взаимодействия. Индексы «1» и «2» относятся к сорбированному атому и к поверхностному атому твердого тела.

Если среднее время сорбированного состояния превышает среднее время триплет-синглетной конверсии, определяемое выражением (4.13) то возможно формирование ковалентной связи. При этом атом из газовой фазы переходит в конденсированное состояние, что обуславливает рост наночастиц.

При медленном охлаждении парогазовой смеси перед образованием ковалентной связи между атомом и наночастицей возможна диффузия адсорбированных атомов по поверхности. Диффузия адсорбированных атомов по поверхности заканчивается испарением атома или формированием ковалентной связи с одним из атомов на поверхности наночастицы. Скорость роста наночастиц зависит от соотношения частоты столкновения атомов из газовой фазы с образованием ковалентной связи и суммарной частоты столкновений с поверхностью наночастицы.

Рассмотрим процессы, определяющие величину коэффициента десублимации γ на основе закономерностей квантовой механики. При постоянной величине проекции оператора спина S_z частицы, имеющей неспаренный электрон, может быть записано соотношение неопределенности для двух других проекций S_x и S_y в виде выражения [169]

$$\Delta S_x \Delta S_y \geq \hbar / 2 \left| \langle S_z \rangle \right|. \quad (4.14)$$

Если неспаренный спин со средним значением $\langle S_z \rangle = \hbar / 2$ имеет нулевую дисперсию проекции на ось z ($\Delta S_z = 0$), то выражение (4.14) можно преобразовать к виду

$$\Delta S_x \Delta S_y \geq (\hbar / 2)^2. \quad (4.15)$$

Если неопределенность проекций оператора спина на оси Ox и Oy равны ($\Delta S_y \approx \Delta S_x$), то из соотношения (3) следует условие $\Delta S_x \geq \hbar / 2$. Поэтому в постоянном слабом магнитном поле можно выделить $n = 2\pi / \Delta\varphi$ диапазонов угла прецессии спина неспаренного электрона, которые можно выделить как одно

«дискретное» состояние при взаимодействии с другим спином. Ранее показано, что неопределенность по углу прецессии составляет $\Delta\varphi \approx 57^\circ$ [171]. Поэтому в постоянном магнитном поле можно выделить $n_1 \approx 6,3$ независимых диапазонов фаз прецессии спина. Если при столкновении двух частиц с неспаренными электронами разность фаз прецессии спинов не превышает $\Delta\varphi$, то вероятность формирования химической связи близка к единице.

Можно выделить n состояний спиновых пар, при взаимодействии двух радикалов, обусловленное неопределенностью фазы прецессии спинов. Для каждого из n состояний первого радикала имеется лишь одно состояние второго радикала, с которым возможно формирование химической связи. При этом синглетные спиновые пары можно рассматривать как предельный случай триплетных пар T_0 . Поэтому триплетные состояния спиновых пар T_0 могут быть реализованы в виде $n(n-1)$ комбинаций угловых положений спинов. Состояния T_{-1} и T_{+1} формируются при взаимодействии двух радикалов с n состояниями спинов одновременно «вверх» или с n состояниями одновременно «вниз». Поэтому каждое из T_{-1} и T_{+1} состояний может быть реализовано n^2 взаимными ориентациями спинов неспаренных электронов. Отсюда вероятность формирования синглетного состояния, в момент контакта двух радикалов со случайным направлением независимых спинов (например, диффузионная радикальная пара), равна

$$\delta_1 S = \frac{[S]}{[S + T_0 + T_{-1} + T_{+1}]} = \frac{n}{n_1 + n_1(n_1 - 1) + 2n_1^2} = \frac{1}{3n_1}. \quad (4.16)$$

Рассуждая, аналогично для хаотичной динамики спина в отсутствие внешнего магнитного поля, можно выделить $n_2 \approx 12,6$ независимых состояний спина, из которых доля синглетного состояния двух случайно сталкивающихся спинов составляет $\delta_2 S = 1:3n_2$. Поэтому внешнее магнитное поле, в некотором диапазоне скорости охлаждения, может значительно увеличить коэффициент десублимации. Это способствует пропорциональному увеличению скорости формирования ядер конденсации и скорости роста дисперсных частиц [140].

Ядра конденсации, при охлаждении газовой фазы, появляются при содержании вещества выше некоторой критической концентрации. Появление ядер конденсации приводит к некоторому уменьшению степени пересыщения, что сопровождается замедлением скорости формирования новых ядер конденсации. При дальнейшем медленном охлаждении концентрация вещества в газовой фазе уменьшается, в основном, из-за увеличения размеров уже имеющихся ядер конденсации и наночастиц. Поэтому наблюдается ограничение функции распределения дисперсных частиц по размерам со стороны малых частиц. Магнитное поле способствует формированию ядер конденсации и ускоренному их росту. В результате имеющееся в газовой фазе вещество распределяется между большим количеством ядер конденсации зародившихся «одновременно» за короткий период в начале нуклеации. Поэтому функции распределения дисперсных частиц по размерам обрезаются также со стороны крупных частиц. В результате формируется конденсированная фаза, имеющая более узкий диапазон размеров, чем в нулевом магнитном поле [172].

4.3.2 Анализ фазового перехода в смеси паров оксидов урана и плутония

При охлаждении многокомпонентной парогазовой системы появление ядер конденсации и формирование конденсированных частиц начинается с компоненты, характеризующейся более высокой температурой фазового перехода [14]. При этом скорость увеличения размера наночастиц определяется соотношением скоростей диффузии атомов к поверхности, нагрева частиц за счет энергии фазового перехода и скорости потерь энергии наночастицей за счет различных процессов.

В парогазовой системе, полученной в результате абляции уран-плутониевого топлива, содержащей такие оксиды, как UO_2 ($T_{\text{кип}} = 3640^\circ\text{C}$) и PuO_2 ($T_{\text{кип}} = 2800^\circ\text{C}$), вначале формируются ядра конденсации UO_2 ввиду большей температуры фазового перехода диоксида урана. Поэтому при медленном охлаждении образуется конденсированная фаза, содержащая только UO_2 . При

падении температуры ниже 2800°C в паровой фазе остается в основном PuO_2 и формируются частицы, содержащие ядро из UO_2 и оболочку из PuO_2 , а также ядра конденсации и частицы, содержащие лишь PuO_2 .

Высокая скорость охлаждения (закалка низкотемпературной плазмы) приводит к более высокой степени пересыщения газовой фазы, что приводит к увеличению скорости образования ядер конденсации. При температурах более 2800°C также формируются только частицы UO_2 . При падении температуры ниже 2800°C в газовой фазе быстро истощаются пары UO_2 . Оставшаяся часть PuO_2 газовой фазы использует для нуклеации поверхность частиц UO_2 . Вследствие значительного уменьшения концентрации в паровой фазе UO_2 рост наночастиц происходит в основном за счет PuO_2 . Поэтому при дальнейшем падении температуры ниже 2800°C формируются частицы с ядром из UO_2 , поверхность которого заполняется PuO_2 . Также происходят процессы нуклеации с формированием центров конденсации из PuO_2 , из которых формируются наночастицы, содержащие только PuO_2 . В результате будут образованы наночастицы, содержащие UO_2 или PuO_2 , а также частицы, имеющие смешанный состав. При медленном охлаждении преобладает процесс формирования наночастицы PuO_2 на поверхности уже сформированных наночастиц UO_2 .

При любом режиме охлаждения парогазовой системы состоящей из диоксидов урана и плутония, сначала конденсируется менее летучая компонента UO_2 в режиме гомогенной нуклеации, а более летучая PuO_2 – на поверхности первой компоненты (гетерогенная нуклеация) [141].

4.4 Непрерывный контроль процесса лазерной очистки поверхности металлов

Повышение эффективности лазерной дезактивации возможно при наличии системы непрерывного автоматического контроля очистки поверхности. Поэтому необходима разработка методов непрерывного контроля процесса лазерной дезактивации в различных средах.

Частицы оксидов в сварном шве могут находиться на разной глубине. Поэтому дезактивация заключается в испарении частиц оксида, имеющего контакт с воздухом. Следует учитывать, что при дезактивации могут быть вскрыты наночастицы из глубинных слоев металла. Поэтому необходимо использовать несколько импульсов и синхронно контролировать наличие на поверхности частиц, частично утопленных в металл.

Технологию лазерной дезактивации с применением нескольких импульсов для одной точки в целях полного испарения радионуклидов со сканируемой поверхности, возможно оптимизировать. Испарение загрязняющих поверхность материалов, сопровождается изменением различных параметров во времени. Так, в случае образования пробоя при лазерной дезактивации, изменяется частота плазмы в плазменном факеле [138]. Частота плазмы зависит от природы вещества и при одинаковых режимах лазерной абляции, определяется плотностью свободных электронов в единице объема. Поэтому очистка поверхности от радионуклидов, находящихся в оксидной форме, сопровождается образованием плазмы с меньшей частотой, чем для плазмы с преобладанием паров металла.

Комбинация различных способов дезактивации делает очистку поверхности более эффективной. Известны методы лазерной очистки поверхности в жидкости, поэтому такой метод возможно применять при электрохимической и ультразвуковой дезактивации в областях с наиболее сильным загрязнением, например, в области сварного шва.

Вода сильно ослабляет радиоволны. Поэтому контроль качества очистки возможен по регистрации сигналов рассеяния от дисперсных частиц в воде.

4.4.1 Контроль степени лазерной очистки поверхности металлов в воздухе по плазменной частоте

Воздействие высокоинтенсивного лазерного излучения приводит к возникновению оптического пробоя, который сопровождается образованием электрических и магнитных полей. Напряженность магнитного поля

регистрируется как в допробойных режимах, так и в оптическом пробое, и может находиться в пределах от 10^2 до 10^5 Тл. В этих режимах интерес представляет исследование частоты плазменных колебаний, которая определяется по формуле:

$$\omega_{Le} = \sqrt{\frac{4\pi e^2 N_e}{m}}, \quad (4.17)$$

где m – масса свободного электрона.

Плазменная частота не зависит от температуры, и определяется по формуле:

$$\omega_{Le} = \sqrt{3 \cdot 10^9 N_e}, \quad (4.18)$$

Видно, с увеличением концентрации электронов, возрастает плазменная частота. Обычно плазму, возникающую в газовом разряде, называют низкотемпературной. При концентрации заряженных частиц $N_e \approx N_i \approx 10^8 \div 10^{15} \text{ см}^{-3}$, температура плазмы составляет $10^4 \div 10^5$ К. В металлах плазму образуют свободные носители заряда, концентрация которых $N \approx 10^{21} \div 10^{22} \text{ см}^{-3}$. Поэтому, при лазерной дезактивации, частота плазмы в парогазовом облаке от оксидов и загрязнений меньше в 1,5-2,5 раза, по сравнению с металлами.

Однако, в случае возникновения пробоя и в допробойных режимах абляции, концентрация свободных электронов хоть и возрастает лавинообразно, но не достигает значений даже слабо ионизированной плазмы. Поэтому в парогазовом облаке, образующемся при абляции, низкая степень ионизации.

Рассматривая формулу плазменной частоты Ленгмюра стоит отметить, что для её применения к реальным условиям, необходимо иметь высокоионизированную плазму. Плазма или оптический пробой, возникающие при лазерной абляции, имеют низкую степень ионизации и низкую концентрацию свободных электронов. Время существования плазмы или пробоя тем больше, чем выше время лазерного импульса некоторой пороговой величины. Поэтому, в слабоионизированной плазме, возникающей при лазерной абляции, на плазменную частоту влияют крупные частицы, на которых может находиться заряд: пыль, аэрозоли. Учитывая низкую степень ионизации и низкую концентрацию свободных электронов, высокое содержание в парогазовом облаке

крупных частиц продуктов абляции, расчет плазменной частоты из формулы Ленгмюра не дает представления о динамике и вероятности процессов образования более крупных частиц в парогазовом облаке. Поэтому, плазменная частота в оптическом пробое и плазме остается темой полуэмпирических исследований.

Для исследования плазменной частоты, возникающей при ионизации аэрозолей в парогазовом облаке продуктов абляции, проводили искусственное запыление атмосферы частицами порошка Al_2O_3 (ТУ 1791-003-36280340-2008) с размером частиц 0,5-1 мкм, со средней концентрацией 10^{10} м^{-3} , измеряемой по ослаблению He-Ne лазера. Затем, проводили ионизацию среды излучением $CO_2:N_2$ лазера с длительностью импульсов 0,3-0,5 мкс.

Для одиночных микросекундных импульсов характерные сигналы с антенны и магнитного зонда приведены на рисунке 4.4.

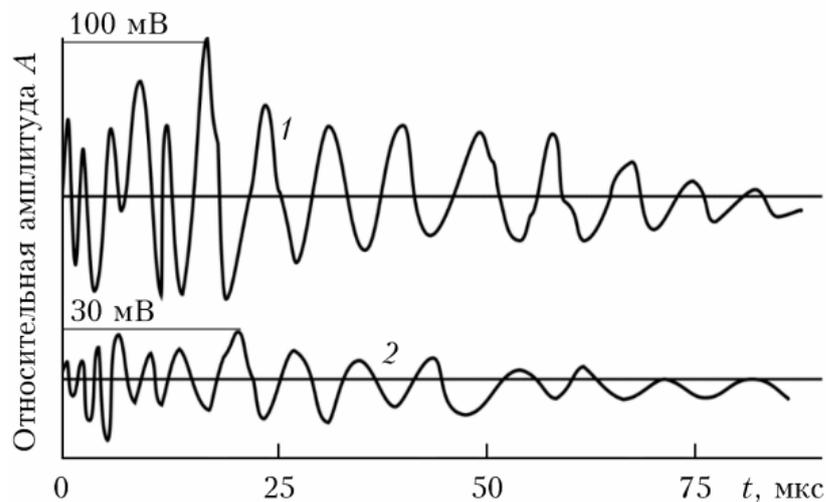


Рисунок 4.4 – Формы сигналов с антенны (1) и магнитного зонда (2)

При возникновении очага пробоя, регистрируются электрические и магнитные поля. Амплитуда регистрируемых сигналов возникающих в результате пробоя уменьшается, а период колебаний увеличивается. На участке с максимальным импульсом по амплитуде, частота регистрируемой электромагнитной волны находится в диапазоне 100-350 кГц [138].

Вариация характеристик плазменной частоты плазмы лазерного пробоя зависит от электрохимического потенциала, состава компонентов парогазового

облака, плотности и гранулометрического состава аэрозоля, пространственной однородности среды. Поэтому по плазменной частоте пробоя, возникающей при дезактивации внешних поверхностей, можно судить о качестве очистки. Испарение с металлической подложки частиц радиоактивных оксидов, сопровождается образованием пробоя и приповерхностной плазмы с частотой электромагнитной волны порядка 10^4 - 10^5 Гц. Уменьшение электромагнитной частоты ниже порога в 10^4 Гц, может служить сигналом о необходимости переместить точку облучения лазерным лучом. Видно, что анализ электрических и магнитных полей, возникающих при дезактивации внешних поверхностей лазерным излучением, позволяет контролировать степень дезактивации.

4.4.2 Исследование процесса сухой и мокрой лазерной дезактивации поверхности металла, по величине сигналов рассеянного излучения

Экспериментальные результаты показывают: при облучении лазерными импульсами высокой интенсивности поверхности металла в атмосферном воздухе или газовой фазе, удаление радиоактивных оксидных частиц происходит за счет их испарения, а также выноса в виде наночастиц и пылевой фракции. В случае применения лазерной дезактивации для определённого изделия или конструкции, обладающих известным исходным составом материала подложки и загрязняющих частиц, наиболее эффективно использование порогового режима дезактивации поверхности. Пороговый режим лазерной дезактивации будет характеризоваться образованием оптического пробоя и приповерхностной плазмы, при воздействии лазерного импульса определенной (пороговой) интенсивности на слой загрязнения содержащий оксидные радиоактивные частицы, имеющие максимальный коэффициент поглощения электромагнитной волны на рабочей длине лазерного излучения. При испарении достаточного слоя оксидных частиц с поверхности и из объема металла, лазерный импульс воздействует на подложку металла с высоким коэффициентом отражения лазерного излучения. Пороговая интенсивность возникновения оптического разряда в данном случае будет

зависеть от комплексного показателя преломления материалов и может отличаться на порядок. Поэтому использование определенной пороговой интенсивности лазерного импульса будет способствовать образованию оптического пробоя излучающего световую вспышку в случае испарения оксидных частиц, и отражению, и рассеянию большей части энергии лазерного импульса при воздействии на уже очищенный участок поверхности.

Для исследования рассеянного излучения при лазерной дезактивации поверхности металла в пороговом режиме, использовали лазер на неодиме в режиме свободной генерации, ФЭУ Hamamatsu H7422, цифровой осциллограф LeCroy 44 Xi. В целях исключения шумов, регистрацию рассеянного излучения проводили в отсутствии освещения, а часть измерительного и электрического оборудования (блоки питания, насос охлаждения) перемещены за пределы испытательной камеры. В качестве объектов облучения использовались имитаторы поверхности твэла: пластинки и сварной шов из конструкционной стали твэла ЧС-68 с нанесенными частицами CeO_2 по методу, описанному в главе 3.

Результаты показали следующее. Использование импульса лазера на неодиме в режиме свободной генерации интенсивностью $38,5 \text{ кВт/см}^2$, для очистки поверхности стали, приводит к регистрации повышенной интенсивности светового излучения и продолжительности импульса для двух последовательных импульсов с частотой следования в 1 Гц. Очевидно, это связано с интенсивным поглощением лазерного излучения в оксидных частицах оксида церия. Пространственно-временное распределение поглощенного потока $q(r, z, t)$ определяет характеристики источника теплоты и определяется по формуле [124]:

$$q(r, z, t) = A \cdot q_{\max} \cdot \varphi(r) \cdot \psi(z) \cdot \xi(t), \quad (4.19)$$

где A – коэффициент поглощения, q_{\max} – интенсивность лазерного облучения, $\varphi(r) \cdot \psi(z) \cdot \xi(t)$ – функции распределения лазерного излучения в радиальном направлении, по глубине и во времени соответственно.

Последующее облучение поверхности металла без изменения области обработки приводит к регистрации рассеянных импульсов низкой интенсивности с частотой 1 Гц. Удаление оксидных частиц сопровождается резким падением

поглощенного потока. Поэтому фотоприемной аппаратурой фиксируется значительное уменьшение интенсивности и амплитуды рассеянного излучения, что полностью говорит об очистке поверхности металла от оксидных частиц и подтверждается как визуально-измерительным контролем, так и исследованиями на оптическом микроскопе.

Таким образом, интенсивность рассеянного излучения несет информацию физического процесса лазерного взаимодействия и может являться критерием для определения качества очистки поверхности металлов от оксидных радиоактивных частиц. Анализ амплитуды интенсивности импульсов рассеянного излучения позволяет проводить непрерывный контроль лазерной дезактивации и минимизировать изменение профиля (шероховатости) поверхности.

Ослабление лазерного излучения в различных однородных поглощающих средах описывается законом Бугера:

$$I(l) = I_0 e^{-al}, \quad (4.20)$$

где a – коэффициент ослабления, l – длина пути оптического излучения.

В жидкостях ослабление лазерного излучения зависит от рабочей длины волны лазера, состава жидкости, наличия взвешенных дисперсных частиц (в том числе воздушных пузырьков) и длины трассы. В диапазоне длин волн, близких к видимому спектру излучения, лазерное излучение способно эффективно распространяться на большие расстояния. Подробно распространение лазерного излучения в жидкости рассмотрено нами в статье [137]. Поэтому лазерное излучение может применяться при лазерной дезактивации в растворах. Наличие жидкости способствует интенсификации процесса.

Ранее нами установлено, что плазменная частота очага лазерного пробоя и плазмы на аэрозолях в газовом облаке имеет порядок 10^5 - 10^6 Гц, что является короткой радиоволной, эффективно ослабляющейся и поглощающейся в воде. Результатом лазерной абляции в воде, помимо испарения твердого вещества, является вскипание воды и образование пузырьков пара, способствующих кавитационному эффекту очистки. Также, лазерная абляция металлов в воде, имеет особенности в процессах нуклеации т.к. испаренный материал мишени

испытывает столкновения с парами жидкости в области высокого давления, где длина пробега меньше на несколько порядков, чем в воздухе. Таким образом, парогазовое облако абляции в жидкости содержит больше дисперсных рассеивающих частиц, чем в воздухе. Концентрация в облаке, образующемся при абляции рассеивающих нанопузырьков и продуктов нуклеации – наночастиц, изменяется в зависимости от поглощающих свойств подложки. При этом интенсивность потока отраженного излучения будет зависеть от диаметра частиц, их концентрации в жидкости и комплексного показателя преломления. Коэффициент рассеяния на дисперсных частицах в жидкости определяется по формуле:

$$k_s(\lambda) = 2\pi \int_0^{\pi} \sigma_{\Sigma}(\theta, \lambda) \sin \alpha \, d\alpha, \quad (4.21)$$

где θ – угол между исходным лучом и направлением рассеяния лазерного излучения; σ_{Σ} - индикатриса рассеяния частиц всех размеров.

Дисперсные частицы уменьшают мощность лазерного излучения:

$$I(l) = I(0) \times \int_0^l \exp\{-k_e(l) l\} dl, \quad (4.22)$$

где $k_e(l)$ – коэффициент ослабления лазерного излучения, l – длина пути.

Форма индикатрисы рассеяния зависит от диаметра рассеивающих частиц и определяется параметром рассеяния, равным:

$$\rho = \frac{\pi d}{\lambda}, \quad (4.23)$$

где d – диаметр частицы, λ – длина волны излучения.

В результате лазерной дезактивации в жидкости, испаряется оксидная пленка на поверхности металла, которая эффективно поглощает рабочую длину волны. Процесс сопровождается большим коэффициентом перевода электромагнитной энергии в тепловую. В жидкости это способствует интенсивному образованию пузырьков пара и удалению загрязненных частиц за счет кавитационных эффектов. В основном, область абляции не имеет резких очертаний, так как содержит полидисперсные взвешенные частицы и пузырьки

пара. Поэтому отраженная от твердой подложки часть электромагнитной волны претерпевает интенсивное рассеяние на наночастицах. При этом формы сигналов, регистрируемых фотоприемником, приведены на рисунке 4.5 будут иметь большую амплитуду и продолжительное послесвечение плазменного образования [149].

При удалении слоя загрязнения и включений радиоактивных микрочастиц оксидного топлива, процессы испарения и образования пузырьков пара становятся менее интенсивными. Большая часть лазерного импульса претерпевает зеркальное отражение от металлической подложки. Поэтому сигнал, регистрируемый фотоприемной аппаратурой, будет содержать периодические импульсы с частотой, равной частоте следования импульсов лазерного излучения.

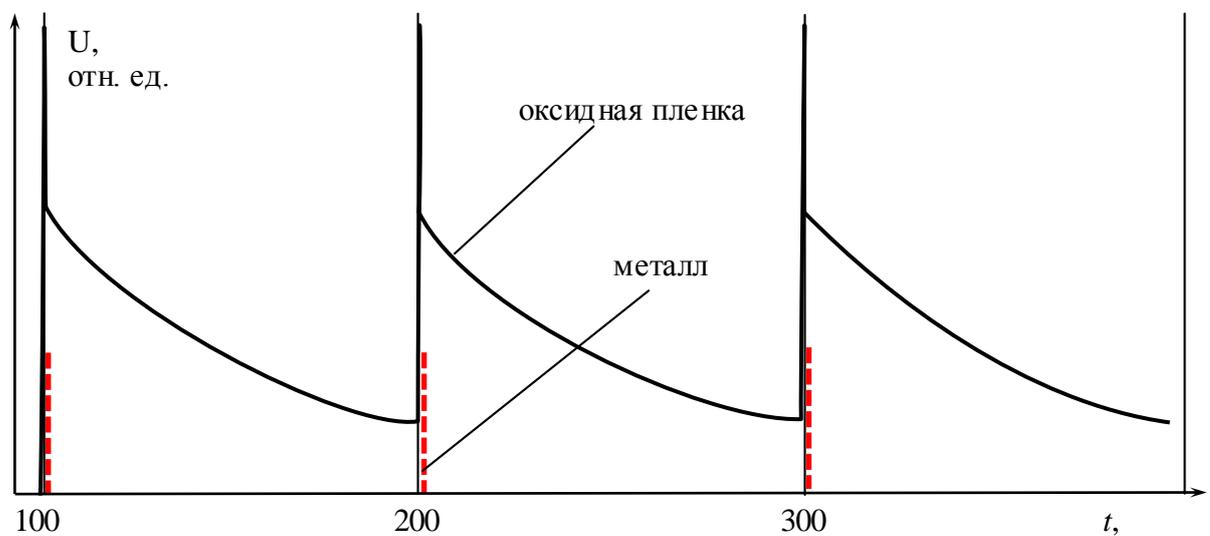


Рисунок 4.5 – Форма потока рассеянного излучения при лазерной абляции

Таким образом, при полной дезактивации металла происходит уменьшение послесвечения плазмы, которое сопровождается изменением формы сигналов, регистрируемых фотоприемником – переходом к периодическим сигналам с меньшей амплитудой. При этом необходимо переместить лазерный луч на соседнюю точку. Видно, что анализ временной зависимости рассеянного излучения позволяет контролировать степень дезактивации в газовой среде и жидкости.

4.5 Выводы по главе 4

1. Экспериментально установлено, что внешнее постоянное магнитное поле 30-180 мТл влияет скорость нуклеации паров из низкотемпературной плазмы. Во внешнем слабом постоянном магнитном поле увеличивается скорость формирования ядер конденсации, дисперсные частицы растут быстрее, а функция распределения дисперсных частиц по размерам сужается. Приведена модель физико-химических процессов, объясняющая наблюдаемые данные [140].

2. Проанализированы физико-химические процессы, протекающие при нуклеации смеси паров UO_2 и PuO_2 при охлаждении низкотемпературной плазмы. Показаны пути управления размерами дисперсных частиц, содержащих UO_2 или PuO_2 . Использование внешнего слабого постоянного магнитного поля способствует увеличению скорости формирования ядер конденсации и уменьшению доли испарившихся атомов. За счет уменьшения скорости охлаждения потока парогазовой смеси, содержащей одновременно UO_2 и PuO_2 , можно получать более крупные компактные дисперсные частицы, содержащие одновременно UO_2 и PuO_2 , а также только PuO_2 [140].

3. Контроль вторичных эффектов лазерной абляции, способствует увеличению эффективности и снижению энергозатрат дезактивации поверхности. Измерение характеристик электрических и магнитных полей очага лазерного пробоя, позволяет контролировать качество дезактивации. Уменьшение частоты электромагнитной волны ниже 10^4 - 10^5 Гц (в зависимости от характеристик среды) говорит об очистке сканируемой поверхности [138].

4. Измерение формы потока и временной зависимости рассеянного излучения при лазерной абляции, позволяет контролировать качество дезактивации поверхностей в жидкостях [137].

ОСНОВНЫЕ ВЫВОДЫ. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Обнаружено, что в диапазоне интенсивностей 17-27 кВт/см² импульсов миллисекундной длительности неодимового лазера возможна очистка сварного шва стали ЧС-68 от внедренных в металл микрочастиц CeO₂. Путем сопоставления оптических и теплофизических характеристик UO₂, PuO₂ и CeO₂ показано, что возможна лазерная очистка стали ЧС-68 от радиоактивных микрочастиц UO₂ и PuO₂ с коэффициентом дезактивации до 5,33, а вновь формируемая шероховатость поверхности сварного шва твэла не превысит допустимую по техническим условиям на поверхность твэла.

2. Впервые показано, что при облучении импульсами CO₂-лазера длительностью 50 нс и интенсивностью 25 МВт/см² микрочастицы UO₂ и PuO₂ диаметром 0,5 мкм нагреваются до точки кипения, а микрочастицы ThO₂ и сталь ЧС-68 – нет. На основании этой особенности доказана возможность проведения дезактивации сварного шва твэлов с мокс-топливом лазерным излучением с длиной волны 10,6 мкм и интенсивностью более 25 МВт/см².

3. Экспериментально показано, что автоматизация процесса контроля общего поверхностного α-загрязнения твэла при лазерной дезактивации возможна с использованием камеры проходного типа, в которой реализована система поддержания среды с максимальным пробегом альфа-частиц. Такие условия позволяют до 2,8 раз уменьшить пороговое значение автоматизированного контроля поверхностного загрязнения. Для этого можно использовать детекторы в камере объемом 5,9 литра с атмосферой гелия, расход которого поддерживается не менее 33 л/ч.

4. Продемонстрировано, что при лазерной абляции поверхности стали ЧС-68, находящейся под слоем жидкости или в газовой среде, миллисекундными импульсами неодимового лазера амплитуда интенсивности импульсов рассеянного излучения пропорциональна количеству микрочастиц CeO₂, находящихся в приповерхностном слое металла.

5. Показано, что при мокрой лазерной очистке поверхности от

радиоактивных микрочастиц процессы испарения и образования пузырьков пара в жидкости приводят к интенсивному рассеянию лазерного излучения. Высокая степень очистки поверхности приводит к уменьшению амплитуды и продолжительности послесвечения плазменного образования. Анализ зависимости от времени величины потока рассеянного излучения, при лазерной абляции, позволяет вести контроль качества очистки поверхности.

6. Установлено, что постоянное магнитное поле с индукцией 30-180 мТл влияет на процесс нуклеации паров из низкотемпературной плазмы. Поэтому воздействие постоянного магнитного поля с индукцией 30-180 мТл увеличивает эффективность лазерной очистки поверхности от микрочастиц, находящихся в приповерхностном слое мишени, импульсами длительностью 1-1,5 мс. Это связано с тем, что постоянное внешнее магнитное поле способствует увеличению скорости как формирования ядер конденсации, так и роста микрочастиц. Одновременное зарождение большого количества ядер конденсации и быстрый их рост приводит к быстрому уменьшению экранировки мишени аэрозолем. Это увеличивает эффективность лазерного воздействия.

* * *

Проведены исследования, результаты которых могут быть положены в основу метода лазерной дезактивации поверхности и сварного шва твэла от микрочастиц оксидов актиноидов и лантаноидов.

Для существующей технологии производства мокс-топлива целесообразно применение комбинации лазерных импульсов двух длин волн: 1,06 мкм в термомеханическом режиме очистки поверхности и удаления нефиксированного радиоактивного загрязнения, и 10,6 мкм в испарительном режиме для удаления фиксированных частиц в сварочном шве твэла. При проектировании новых автоматических линий изготовления уран-плутониевого топлива, в том числе с использованием метода лазерной сварки, необходимо предусмотреть очистку поверхности торца и заглушки твэла лазерным излучением в термомеханическом режиме непосредственно перед сваркой твэла.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Mohamed N. M. A., Badawi A. Use of Thorium-Plutonium MOX in the inner pins of CANDU fuel bundles //Progress in Nuclear Energy. – 2016. – Т. 91. – С. 49-55.
2. Chang G. S., Ryskamp J. M. Depletion analysis of mixed-oxide fuel pins in light water reactors and the advanced test reactor //Nuclear Technology. – 2000. – Т. 129. – № 3. – С. 326-337.
3. Zou C. Y. et al. Transition to thorium fuel cycle for TMSR //Nuclear Engineering and Design. – 2018. – Т. 330. – С. 420-428.
4. Humphrey U. E., Khandaker M. U. Viability of thorium-based nuclear fuel cycle for the next generation nuclear reactor: Issues and prospects //Renewable and Sustainable Energy Reviews. – 2018. – Т. 97. – С. 259-275.
5. Basak U., Dyck G. R. IAEA activities on assessment of partitioning processes for transmutation of actinides. – 2010.
6. Гаврилов П.М., Крюков О.В., Иванов К.В. и др. РЕМИКС-топливо ядерно-топливного цикла. Патент РФ №2702234, Опубл. 07.10.2019. Бюл. №28.
7. Tanaka K. et al. Microstructure and elemental distribution of americium-containing uranium plutonium mixed oxide fuel under a short-term irradiation test in a fast reactor //Journal of Nuclear Materials. – 2009. – Т. 385. – № 2. – С. 407-412.
8. Shadrin A. Y. et al. Fuel fabrication and reprocessing for nuclear fuel cycle with inherent safety demands //Radiochimica Acta. – 2015. – Т. 103. – № 3. – С. 163-173.
9. Denisov A. L. et al. Key Features of Design, Manufacturing and Implementation of Laboratory and Industrial Equipment for Mixed Uranium-Plutonium Oxide and Nitride Fuel Pellets Fabrication in Russia. – 2017. IAEACN245-563, pp.1-10.
10. Кравченко Г. А. и др. Получение мокс-топлива как один из этапов замыкания ядерного топливного цикла //Космические аппараты и технологии. – 2014. – № 1 (7).

11. Зильберман Б. Я. и др. Развитие технологической структуры переработки облученного ядерного топлива АЭС водно-экстракционными методами, ее анализ и подходы к моделированию //Атомная энергия. – 2009. – Т. 107. – №. 5. – С. 273-285.
12. Shadrin A. Y. et al. PH process as a technology for reprocessing mixed uranium–plutonium fuel from BREST-OD-300 reactor //Radiochemistry. – 2016. – Т. 58. – №. 3. – С. 271-279.
13. Куляко Ю. М. и др. Получение и переработка оксидного ядерного топлива: новые подходы и методы //Вопросы радиационной безопасности. – 2015. – №. 3. – С. 13-22.
14. Novoselov I.Y., Karengin A.G., Babaev R.G. Simulation of uranium and plutonium oxides compounds obtained in plasma //AIP Conference Proceedings. – AIP Publishing LLC, 2018. – Т. 1938. – №. 1. – С. 020016.
15. Мацеля В. И., Бараков Б. Н., Попков В. А. и др. Способ растворения диоксида плутония, скрапа мокс-топлива и извлечения америция. Патент РФ № 2732081. Опубл. 11.09.2020. Бюл. №26.
16. Апальков Г. А., Смирнов С. И., Жабин А. Ю. и др. Способ извлечения серебра из азотнокислых актиноид-содержащих растворов (варианты). Патент РФ № 2618874. Опубл. 11.05.2017. Бюл. №14.
17. Arnold B. W. et al. Reference design and operations for deep borehole disposal of high-level radioactive waste //SAND2011-6749, Sandia National Laboratories, Albuquerque, NM. – 2011.
18. Рыбальченко А. И. и др. 50 лет глубинного захоронения жидких радиоактивных отходов-практические и научные результаты //Геоэкология. Инженерная геология, гидрогеология, геокриология. – 2014. – №. 1. – С. 86-90.
19. Raj K., Kaushik C. P. Glass matrices for vitrification of radioactive waste—an Update on R & D Efforts //IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – IOP Publishing, 2009. – Т. 2. – №. 1. – С. 012002.

20. Васильев Б. А. и др. Опыт и перспективы модернизации активной зоны реактора БН-600 //Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2011. – №. 1. – С. 158.
21. Kloosterman J. L. Multiple recycling of plutonium in advanced PWRs. – Netherlands Energy Research Foundation ECN, 1998. – №. ECN-RX--98-011.
22. Клинов Д. А. и др. Возможность облагораживания плутония в БН-800 //Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-реакторные константы. – 2020. – №. 2. – С. 15-21.
23. Алексеев П. Н. Направления развития системы ядерной энергетики //Инноватика и экспертиза: научные труды. – 2016. – №. 3. – С. 67-80.
24. Декусар В. М. и др. Анализ характеристик РЕМИКС-топлива при многократном рецикле в реакторах ВВЭР //Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2013. – №. 4. – С. 109.
25. Серебряков В. В. и др. Радиационная обстановка при изготовлении опытных твэлов из регенерированного топлива //Атомная энергия. – 2005. – Т. 98. – №. 5. – С. 351-360.
26. Вейко В. П. и др. Лазерная дезактивация металлических поверхностей //Оптический журнал. – 2007. – Т. 74. – №. 8. – С. 33-36.
27. Denisov E.I., Pulin A.A. Оценка возможностей гамма-спектрометрического метода оперативного непрерывного контроля урана в растворах //Аналитика и контроль. – 2014. – Т. 18. – №. 1. – С. 31-39.
28. Мартынюк Ю. Н., Нурлыбаев К., Ревков А. А. Дозиметрия импульсного излучения //АНРИ. – 2018. – №. 1. – С. 2.
29. Нурлыбаев К. Государственный реестр средств измерений РФ: приборы радиационного контроля. Часть 2. Носимые радиометры-дозиметры //АНРИ. – 2007. – №. 4. – С. 2-8.
30. Осовец С. В., Азизова Т. В., Григорьева Е. С. Оценка риска и дозовых порогов при плутониевом пневмосклерозе //Медицинская радиология и радиационная безопасность. – 2018. – Т. 63. – №. 2. – С. 33-40.

31. Ершов Э. Б., Осанов Д. П. Дозиметрия кожи при её постоянном поверхностном загрязнении растворами плутония-239 и америция-241 //Радиационная гигиена. – 2015. – Т. 5. – №. 4. – С. 36-39.
32. Сокольников М. Э. и др. Риск рака лёгкого у работников при внутреннем облучении от инкорпорированного плутония //Сибирский медицинский журнал (г. Томск). – 2003. – Т. 18. – №. 5. – С. 31-35.
33. Василенко И. Я., Василенко О. И. Плутоний //Энергия: экономика, техника, экология. – 2004. – №. 1. – С. 60-63.
34. Francois J. L., Guzmán J. R., Martín-del-Campo C. Study of the radiotoxicity of actinides recycling in boiling water reactors fuel //Nuclear engineering and design. – 2009. – Т. 239. – №. 10. – С. 1911-1915.
35. СанПиН 2.6.1.2523-09. Нормы радиационной безопасности. НРБ-99/2009. Санитарные правила и нормативы. - М.: Роспотребнадзор, 2009.
36. Кузнецов А. Ю. и др. Применение дезактивации вакуумированием при проведении работ по подготовке и выводе из эксплуатации объектов АО" ВНИИНМ" //Вопросы атомной науки и техники. Серия: Материаловедение и новые материалы. – 2017. – №. 3. – С. 88-99.
37. Волкова А. Г. и др. Радионуклиды в облученном графите уран-графитовых реакторов: дезактивация термохимическими методами //Радиохимия. – 2018. – Т. 60. – №. 6. – С. 558-563.
38. Мышкин В.Ф., Хан В.А., Туксов И.В., Хорохорин Д.М. Устройство для возбуждения факельного разряда. Патент РФ №2713214, Опубл. 04.02.2020. Бюл. №4.
39. Зимон А. Д., Пикалов В. К. Дезактивация. М.: Издат, 1994.-336 с //Ил. Библиогр. – Т. 209.
40. ГОСТ 20286-90 Загрязнение радиоактивное и дезактивация. Термины и определения.
41. Широков С. В., Мазинов М. М. Электрохимическая дезактивация парогенераторов //Ядерна та радіаційна безпека. – 2012.

42. Лебедев Н.М., Васильев А.П., Дубинин Г.В. и др. Ультразвуковая установка для дезактивации металлических деталей. Патент РФ №2384906, Оpubл. 20.03.2010. Бюл. №8.
43. Вейко В. П. и др. Лазерная очистка поверхностей металлов: физические процессы и применение //Известия высших учебных заведений. Приборостроение. – 2008. – Т. 51. – №. 4.
44. Siano S. et al. Laser cleaning in conservation of stone, metal, and painted artifacts: state of the art and new insights on the use of the Nd: YAG lasers //Applied Physics A. – 2012. – Т. 106. – №. 2. – С. 419-446.
45. Sentis M. L. et al. Surface oxide removal by a XeCl laser for decontamination //Quantum electronics. – 2000. – Т. 30. – №. 6. – С. 495.
46. Диктор А., Фишер М. Способ автоматической дезактивации ядерного топливного стержня и устройство для его осуществления. Патент РФ №2433491, Оpubл. 10.11.2011 Бюл. №31.
47. Васильев Н.Д., Герасимов Д.Г., Раук К.В. Способ автоматической дезактивации стержневых тепловыделяющих элементов и устройство для его осуществления. Патент РФ №2605540, Оpubл. 27.07.2016 Бюл. № 21.
48. Haas D. et al. Mixed-oxide fuel fabrication technology and experience at the Belgonucléaire and CFCa plants and further developments for the MELOX plant //Nuclear technology. – 1994. – Т. 106. – №. 1. – С. 60-82.
49. Kumar A. et al. Ultrasonic decontamination of prototype fast breeder reactor fuel pins //Ultrasonics. – 2014. – Т. 54. – №. 4. – С. 1052-1056.
50. Акатов А. А. и др. Глубокая дезактивация металла с применением ультразвука и электрохимических реакций //Актуальные вопросы ядерно-химических технологий и экологической безопасности. – 2016. – С. 57-60.
51. Kumar A. et al. Laser-assisted decontamination of fuel pins for prototype fast breeder reactor //Nuclear Technology. – 2013. – Т. 182. – №. 2. – С. 242-247.
52. Weil B. S. Laser cutting system for nuclear fuel disassembly. – Oak Ridge National Lab., TN (USA), 1985. – №. CONF-8511103-1.

53. Carty, Jean-Pierre. Procédé de travail au laser dans une zone contaminée d'une installation nucléaire, et équipement pour sa mise en oeuvre. European patent №0520847. Date de publication 30.12.1992. Bulletin 92/53.
54. Picco B, Marchand M, Process and apparatus for removing from nuclear fuel pellets by means of a laser beam. US Patent No. 5,790,621. 4 Aug. 1998.
55. Тюрко Б, Фишер М, Лазерная дезактивация поверхностей профилированных деталей. Патент РФ №2411044, Оpubл.10.02.2011 Бюл. №4.
56. Sentis M. L. et al. Excimer laser decontamination //International conference on atomic and molecular pulsed lasers III. – International Society for Optics and Photonics, 2000. – Т. 4071. – С. 196-208.
57. Sentis M. L. et al. Cleaning of large area by excimer laser ablation //High-Power Lasers in Civil Engineering and Architecture. – International Society for Optics and Photonics, 2000. – Т. 3887. – С. 316-325.
58. Delaporte P. et al. Dry excimer laser cleaning applied to nuclear decontamination //Applied Surface Science. – 2003. – Т. 208. – С. 298-305.
59. Francois C, Cormont P., Geleoc M. et al. Method and device for laser ablation of a surface coating from a wall, such as a coat of paint in a nuclear plant. US Patent No. 8,330,073. 11 Dec. 2012.
60. Potiens Jr A. J. et al. Laser decontamination of the radioactive lightning rods //Radiation Physics and Chemistry. – 2014. – Т. 95. – С. 188-190.
61. Lin Y. C. et al. A compact and portable laser radioactive decontamination system using passive Q-switched fiber laser and polygon scanner //Applied Radiation and Isotopes. – 2019. – Т. 153. – С. 108835.
62. Roberts D. E., Modise T. S. Laser removal of loose uranium compound contamination from metal surfaces //Applied surface science. – 2007. – Т. 253. – №. 12. – С. 5258-5267.
63. Hirabayashi T., Kameo Y., Myodo M. Application of a laser to decontamination and decommissioning of nuclear facilities at JAERI //High-Power Lasers in Civil Engineering and Architecture. – International Society for Optics and Photonics, 2000. – Т. 3887. – С. 94-103.

64. Kumar A. et al. CO₂ laser assisted removal of UO₂ and ThO₂ particulates from metal surface //Applied surface science. – 2011. – Т. 257. – №. 16. – С. 7263-7267.
65. Siu C. Semiconductor physics //Electronic Devices, Circuits, and Applications. – Springer, Cham, 2022. – С. 35-39.
66. Поклонский Н. А. Полупроводники в мире материалов //Наука и инновации. – 2016. – Т. 8. – №. 162. – С. 64-69.
67. Schoenes J. Optical properties and electronic structure of UO₂ //Journal of Applied Physics. – 1978. – Т. 49. – №. 3. – С. 1463-1465.
68. Luk'yanchuk B. S. et al. Three-dimensional effects in dry laser cleaning //Applied Physics A. – 2003. – Т. 77. – №. 2. – С. 209-215.
69. Padma Nilaya J., Biswas D. J., Kumar A. Laser assisted decontamination of nuclear fuel elements. – Bhabha Atomic Research Centre, 2010. – №. BARC--2010/E/004.
70. Nilaya J. P., Biswas D. J. Laser assisted decontamination of metal surface: Evidence of increased surface absorptivity due to field enhancement caused by transparent/semi-transparent contaminant particulates //Applied surface science. – 2010. – Т. 256. – №. 6. – С. 1867-1870.
71. Phuoc T. X. A comparative study of the photon pressure force, the photophoretic force, and the adhesion van der Waals force //Optics communications. – 2005. – Т. 245. – №. 1-6. – С. 27-35.
72. Бараш Ю. С., Гинзбург В. Л. Некоторые вопросы теории сил Ван-дер-Ваальса //Успехи физических наук. – 1984. – Т. 143. – №. 7. – С. 345-389.
73. Tam A. C. et al. Laser-cleaning techniques for removal of surface particulates //Journal of Applied Physics. – 1992. – Т. 71. – №. 7. – С. 3515-3523.
74. Lu Y. F., Song W. D., Low T. S. Laser cleaning of micro-particles from a solid surface—theory and applications //Materials chemistry and physics. – 1998. – Т. 54. – №. 1-3. – С. 181-185.
75. Киселев М. Г., Новиков А. А. Исследование особенностей поведения абразивных зерен при их внедрении в материал подложки при различных

условиях нагружения //Вестник Гомельского государственного технического университета им. ПО Сухого. – 2005. – №. 4 (23).

76. Lu Y. F. et al. Wavelength effects in the laser cleaning process //Japanese journal of applied physics. – 1998. – Т. 37. – №. 3R. – С. 840.

77. Kim D. et al. Experimental and theoretical analysis of the laser shock cleaning process for nanoscale particle removal //Applied surface science. – 2007. – Т. 253. – №. 19. – С. 8322-8327.

78. Dolgaev S. I. et al. Formation of conical microstructures upon laser evaporation of solids //Applied Physics A. – 2001. – Т. 73. – №. 2. – С. 177-181.

79. Анисимов С. И., Лукьянчук Б. С. Избранные задачи теории лазерной абляции //Успехи физических наук. – 2002. – Т. 172. – №. 3. – С. 301-333.

80. Werwa E. et al. Synthesis and processing of silicon nanocrystallites using a pulsed laser ablation supersonic expansion method //Applied physics letters. – 1994. – Т. 64. – №. 14. – С. 1821-1823.

81. Marine W., Luk'yanchuk B., Sentis M. Silicon nanocluster synthesis by conventional laser Ablation //Le Vide (1995). – 1998. – Т. 54. – №. 288. – С. 440-469.

82. Luk'yanchuk B. S. et al. Condensation of vapor and nanoclusters formation within the vapor plume produced by nanosecond laser ablation of Si, Ge, and C //Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing IV. – International Society for Optics and Photonics, 1999. – Т. 3618. – С. 434-452.

83. Kuwata Y., Luk'yanchuk B. S., Yabe T. Nanocluster formation within the vapor plume produced by nanosecond laser ablation: effect of the initial density and pressure distributions //High-Power Laser Ablation III. – International Society for Optics and Photonics, 2000. – Т. 4065. – С. 441-451.

84. Грачев Г. Н. и др. Тепловое самовоздействие мощного непрерывного и импульсно-периодического излучения СО 2-лазера в воздухе: II. Лабораторные эксперименты //Оптика атмосферы и океана. – 2013. – Т. 26. – №. 9. – С. 726-733.

85. Зуев В. Е., Якушенков Ю. Г. Распространение лазерного излучения в атмосфере. – 1981.

86. Баландин С. Ф. и др. Электрические параметры канала лазерного пучка в атмосфере. I //Известия высших учебных заведений. Физика. – 2019. – Т. 62. – №. 4. – С. 16-20.
87. Баландин С. Ф. и др. Электрические параметры канала лазерного пучка в атмосфере. II //Известия высших учебных заведений. Физика. – 2019. – Т. 62. – №. 5. – С. 3-8.
88. Koch J. et al. Visualization of aerosol particles generated by near infrared nano-and femtosecond laser ablation //Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy. – 2007. – Т. 62. – №. 1. – С. 20-29.
89. Watkins K. G., Curran C., Lee J. M. Two new mechanisms for laser cleaning using Nd: YAG sources //Journal of Cultural Heritage. – 2003. – Т. 4. – С. 59-64.
90. Veiko V. P. et al. Laser decontamination of metallic surfaces //Journal of Optical Technology. – 2007. – Т. 74. – №. 8. – С. 536-538.
91. Hirooka Y. et al. Laboratory experiments on cluster/aerosol formation by colliding ablation plumes //Journal of Physics: Conference Series. – IOP Publishing, 2010. – Т. 244. – №. 3. – С. 032033.
92. Khan V. A. et al. Automation of the monitoring system for surface contamination with α -active radionuclides //IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. – IOP Publishing, 2021. – Т. 1019. – №. 1. – С. 012086.
93. Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С. Об автоматизированном контроле содержания на поверхности альфа-активных радионуклидов //Безопасность при обращении с РАО и радиозэкология: сборник тезисов докладов IX Школы-конференции молодых атомщиков Сибири. Томск 17 Октября – 19 Октября 2018 года. – Томск: Дельтаплан, 2018 – С. 47.
94. Хорохорин Д. М., Еремеев Р. С., Балачков М. М. Разработка системы автоматического контроля альфа-активных радионуклидов на поверхности // Изотопы: технологии, материалы и применение : материалы V Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 19-23 ноября 2018 г. — Томск : Графика, 2018. — С. 32.

95. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С. Об автоматическом контроле снимаемого загрязнения поверхности твэлов //Научная сессия НИЯУ МИФИ «Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий», г. Северск, 12 – 16 апреля 2021 года. Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2021. — С. 71.

96. Kelly J. E. Generation IV International Forum: A decade of progress through international cooperation //Progress in Nuclear Energy. – 2014. – Т. 77. – С. 240-246.

97. Адамов Е. О. и др. Структура и параметры двухкомпонентной ядерной энергетики при переходе к замыканию ядерного топливного цикла //Известия Российской академии наук. Энергетика. – 2016. – №. 5. – С. 14-32.

98. Шумаков А. В. Использование радиационных мониторов для обнаружения загрязнения персонала //Атомная энергия. – 2013. – Т. 114. – №. 4. – С. 216-222.

99. Вострухов В. Е., Вострухов А. В., Чернышев О. В. Способ определения активности мазков из носовой полости персонала. Патент РФ № 2659387, Опубл. 29.06.2018 Бюл. № 19.

100. Вострухов В. Е. и др. Устройство для раннего обнаружения радионуклидов, инкорпорированных в кисти рук персонала //Вопросы атомной науки и техники. НИИТФА. 2015. – Т. 71. – С. 80-87.

101. Черевик В.М., Купцов С.В., Антощенко А.Ю. и др. Установка для контроля альфа-загрязненности тепловыделяющих элементов. Патент РФ № 2696001. Опубл. 30.07.2019. Бюл. № 22.

102. Antonenko M. et al. Clay-based matrices incorporating radioactive silts: A case study of sediments from spent fuel pool //AIP Conference Proceedings. – AIP Publishing LLC, 2018. – Т. 1938. – №. 1. – С. 020002.

103. СП 2.6.1.2612-10 "Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010)"

104. Машкович В.П., Кудрявцева А.В. Защита от ионизирующих излучений. Справочник // М.: Энергоатомиздат. 1995. – 496 с

105. Babaev R. G., Karengin A. A., Novoselov I. Y. Plasma-chemical synthesis and evaluation of thermal conductivity of complex oxide compositions for advanced types of nuclear fuel //IX School-conference of young nuclear scientists of Siberia. Collection of abstracts. – 2018.

106. Myshkin V. F. et al. The Influence Of Magnetic Field On The Electrodialysis, Ion Exchange And Electrolysis In A Mixture Of Isotopes //Journal of Industrial Pollution Control. – 2016. – Т. 32. – №. 2.

107. Радиационная защита и безопасность источников излучения. Международные основные нормы безопасности. Общие требования безопасности. Серия норм безопасности МАГАТЭ, N GSR Part 3. МАГАТЭ Вена, 2015.

108. Мухин К. Н. Экспериментальная ядерная физика. В 2 кн. Кн. 1. Физика атомного ядра. Ч. I. Свойства нуклонов, ядер и радиоактивных излучений.— М.: Энергоатомиздат, 1993. - С. 137.

109. Nahum A. Interactions of charged particles with matter //Handbook of Radiotherapy Physics: Theory and Practice. – 2007. – С. 35-55.

110. Красников Ю.В., Стародубцев А.В., Степанов А.М. Способ автоматического контроля снимаемой альфа-загрязненности твэлов и устройство для его осуществления. Патент РФ № 2615036. Оpubл. 03.04.2017. Бюл. № 10.

111. Пузырев В.И., Кошкин В.Ю., Юткин М.В., и др. Способ автоматического контроля снимаемой альфа-загрязненности твэлов и устройство для его осуществления. Патент РФ № 2663209. Оpubл. 02.08.2018. Бюл. № 22.

112. Vespala E. V. et al. Heat and mass transfer in cesium evaporation from graphite surface in argon //Atomic Energy. – 2017. – Т. 122. – №. 6. – С. 400-405.

113. Myshkin V. F. et al. Distribution of temperature field in plasma flow of high frequency unipolar torch plasmatron //Journal of Industrial Pollution Control. – 2016. – Т. 32. – №. 2.

114. Мышкин В.Ф., Пушкарев А.И., Туксов И.В., Лукин А.В., Хан В.А., Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С., Лычагин Д.В. Лазерная дезактивация поверхности твэла от частиц уран-плутониевого топлива // Атомная энергия, 2021. Том 131, №1, С. 29-34.

115. Myshkin V.F., Pushkarev A.I., Tuksov I.V., Lukin A.V., Khan V.A., Khorokhorin D.M. et al. Laser Decontamination of a Fuel-Element Surface from Uranium-Plutonium Fuel Particles // Atomic Energy. – 2022. – С. 1-5.

116. Хорохорин Д.М., Кузнецов М.С., Еремеев Р.С. Лазерная очистка от радионуклидов поверхностей твэлов // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине: сборник научных трудов Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых, г. Томск, 30 сентября-04 октября 2019 г.—Томск, 2019. – 2019. – С. 159.

117. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Кузнецов М.С., Лазерная дезактивация поверхностей твэлов // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине. Российский и международный опыт подготовки кадров: сборник научных трудов X Международной научно-практической конференции, г. Томск, 09–11 сентября 2020 г. – 2020. – С. 59-60.

118. Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С., Лукин А.В. Лазерная абляция поверхности стали // Изотопы: технологии, материалы и применение: сборник тезисов докладов VI Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 26-29 октября 2020 г. – Томский политехнический университет, 2020. – С. 29.

119. Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С. Лазерный нагрев частиц тугоплавких оксидов// Изотопы: технологии, материалы и применение: сборник тезисов докладов VI Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 26-29 октября 2020 г. – Томский политехнический университет, 2020. – С. 30.

120. Хорохорин Д.М., Кузнецов М.С., Лукин А.В. Очистка поверхности металла от пылинок за счет лазерного нагрева. // Изотопы: технологии, материалы и применение: сборник тезисов докладов VI Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 26-29 октября 2020 г. – Томский политехнический университет, 2020. – С. 31.

121. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С., Изменение поверхности металлов при лазерной дезактивации. Научная сессия НИЯУ МИФИ Инновационные ядерные технологии. г. Снежинск, 2020. – С. 83.

122. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С. Метод лазерной дезактивации поверхности и сварного шва твэла // Научная сессия НИЯУ МИФИ «Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий», г. Северск, 12 – 16 апреля 2021 года. Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2021. — С. 72.

123. Хан В.А., Хорохорин Д.М., Мышкин В.Ф., Баранов О.Г. Процессы, протекающие при лазерной дезактивации поверхности трубки и сварного шва твэла от частиц уран-плутониевого топлива // Молодежная научно-практическая конференция «Материалы и технологии в атомной энергетике», г. Москва, 22-23 июня 2022 года. Изд-во АО «ВНИИНМ», 2022. — С. 28.

124. Лосев В. Ф., Морозова Е. Ю., Ципилев В. П. Физические основы лазерной обработки материалов. Учебное пособие. Томск: Издательство Томского политехнического университета. – 2011. 199 с.

125. Khan M. M. et al. Defect-induced band gap narrowed CeO₂ nanostructures for visible light activities // *Industrial & Engineering Chemistry Research*. – 2014. – Т. 53. – №. 23. – С. 9754-9763.

126. Mark McCleskey T. et al. Optical band gap of NpO₂ and PuO₂ from optical absorbance of epitaxial films // *Journal of Applied Physics*. – 2013. – Т. 113. – №. 1. – С. 013515.

127. Boudjemline A. et al. Dependence of pressure on elastic, electronic and optical properties of CeO₂ and ThO₂: A first principles study // *Computational materials science*. – 2011. – Т. 50. – №. 7. – С. 2280-2286.

128. Young R.A. Model for the electronic contribution to the thermal and transport properties of ThO₂, UO₂, and PuO₂ in the solid and liquid phases // *Journal of Nuclear Materials* 87 (1979) 283-296.

129. Konings R. J. M. et al. The thermodynamic properties of the f-elements and their compounds. Part 2. The lanthanide and actinide oxides // *Journal of Physical and Chemical Reference Data*. – 2014. – Т. 43. – №. 1. – С. 013101.

130. Райст П. Аэрозоли: Введение в теорию: Пер. с англ. – мир, 1987.
131. Веденов А.А., Гладуш ГГ. Физические процессы при лазерной обработке материалов. М.: Энергоатомиздат, 1985. 208 с.
132. Манако В. В., Путилин В. А., Камашев А. В. Расчет температуры при нагреве неподвижным лазерным импульсом //Теплофизика высоких температур. – 2011. – Т. 49. – №. 1. – С. 126-132.
133. Linares R.C. Growth and properties of CeO₂ and ThO₂ single crystals // J. Phys. Chem. Solids Pergamon Press. 28 1285-1291 (1967).
134. Александров Е. И., Вознюк А. Г., Ципилев В. П. Влияние поглощающих примесей на зажигание ВВ лазерным излучением //Физика горения и взрыва. – 1989. – Т. 25. – №. 1. – С. 3-9.
135. Hudry D. et al. Ultra-small plutonium oxide nanocrystals: An innovative material in plutonium science //Chemistry–A European Journal. – 2014. – Т. 20. – №. 33. – С. 10431-10438.
136. Horn I., von Blanckenburg F. Investigation on elemental and isotopic fractionation during 196 nm femtosecond laser ablation multiple collector inductively coupled plasma mass spectrometry //Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy. – 2007. – Т. 62. – №. 4. – С. 410-422.
137. Абрамова Е.С., Мышкин В.Ф., Хан В.А., Баландин С.Ф., Еремеев Р.С., Павлова М.С., Хорохорин Д.М. Об использовании бистатических подводных оптических систем связи, «Т-Comm-Телекоммуникации и транспорт», 2020, № 8, С. 4-12.
138. Myshkin V.F., Balandin S.F., Donchenko V. A., Pogodaev V.A., Khan V. A., Abramova E.S., Kulakov Yu.I., Pavlova M.S. , Khazan V.L. , Horohorin D.M. Generation of Electric and Magnetic Fields during High-Intensity Laser Radiation Propagation through the Atmosphere // Atmospheric and Oceanic Optics, 2020, V. 33. №. 5. pp. 549–554.
139. Мышкин В.Ф., Баландин С.Ф., Донченко В.А., Погодаев В.А., Хан В.А., Абрамова Е.С., Кулаков Ю.И., Павлова М.С., Хазан В.Л., Хорохорин Д.М. Генерация электрических и магнитных полей при

распространении высокоинтенсивного лазерного излучения в атмосфере // Оптика атмосферы и океана. – 2020. – Т. 33. – №. 4. – С. 302-308.

140. Мышкин В.Ф., Туксов И.В., Ван Цайлунь, Лукин А.В., Хан В.А., Лычагин Д.В., Хорохорин Д.М., Баландин С.Ф. Формирование аэрозоля в магнитном поле при лазерной абляции // Атомная энергия, 2021. Том 131, №1, С. 29-34.

141. Мышкин В.Ф., Хан В.А., Хорохорин Д.М., Дорофеева Л.И., Тимченко С.Н., Еремеев Р.С., Волокитин О.Г. Плазменная переработка топливных таблеток // Атомная энергия, 2021. Статья принята в печать.

142. Гамов Д.Л., Хорохорин Д.М., Роздольский В.Г., Шикерун К.Т. Исследование процесса десублимации углерода в низкотемпературной плазме, находящейся в магнитном поле // Изотопы: технологии, материалы и применение: материалы IV Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 30 октября - 3 ноября 2017 г. – Томск, 2017. – С. 22.

143. Хорохорин Д.М., Загузин И.Ю., Юрьев П.А., Леонтьева Д.А. Особенности формирования изотопных кластеров в твердом теле и их влияние свойства материалов // Изотопы: технологии, материалы и применение: материалы IV Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 30 октября-3 ноября 2017 г. – Томск, 2017. – С. 52.

144. Гамов Д.Л., Григорьев А.С., Хорохорин Д.М. Формирование и рост дисперсных частиц в плазме, находящейся в магнитном поле // Изотопы: технологии, материалы и применение: материалы V Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 19-23 ноября 2018 г. – Томск, 2018. – С. 39.

145. Миклашевич Л.А., Гамов Д.Л., Хорохорин Д.М. Лазерная диагностика дисперсных частиц, формирующихся в постоянном магнитном поле // Изотопы: технологии, материалы и применение: материалы V Международной научной

конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 19-23 ноября 2018 г. – Томск, 2018. – 2018. – С. 41.

146. Банников И.В., Хорохорин Д.М. Моделирование испарения изотопов с поверхности нержавеющей стали с помощью лазерного излучения // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине (ФТПНПМ-2019): сборник научных трудов Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых, г. Томск, 30 сентября-04 октября 2019 г. – Томск, 2019. – 2019. – С. 109-110.

147. Туксов И.В., Хорохорин Д.М., Лукин А.В. Отбор проб нанопорошка из очага лазерного пробоя. // Изотопы: технологии, материалы и применение: сборник тезисов докладов VI Международной научной конференции молодых ученых, аспирантов и студентов, г. Томск, 26-29 октября 2020 г. – Томский политехнический университет, 2020. – С. 33.

148. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Зыков И.Ю., Баландин С.Ф., Туксов И.В., Ван Ц., Лукин А.В., Шикерун К.Т. // Закономерности формирования антропогенного аэрозоля в магнитном поле при лазерной обработке твердых тел. Тезисы докладов XXVII конференции Аэрозоли Сибири. – Томск: Изд-во ИОА СО РАН, 2020. – С. 69.

149. Хан В.А., Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Еремеев Р.С. Метод контроля процесса лазерной дезактивации поверхности в жидкости // Научная сессия НИЯУ МИФИ «Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий», г. Северск, 12 – 16 апреля 2021 года. Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2021. — С. 70.

150. Мышкин В.Ф., Туксов И.В., Хорохорин Д.М., Лукин А.В. Отбор наночастиц при лазерной абляции // Научная сессия НИЯУ МИФИ «Актуальные проблемы инновационного развития ядерных технологий», г. Северск, 12 – 16 апреля 2021 года. Изд-во СТИ НИЯУ МИФИ, 2021. — С. 61.

151. Еремеев Р.С., Хорохорин Д.М., Банников И.В. Возможности внедрения лазерных методов в технологию формирования МОКС-топлива // Физико-технические проблемы в науке, промышленности и медицине (ФТПНПМ-

2019): сборник научных трудов Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов и молодых ученых, г. Томск, 30 сентября-04 октября 2019 г. – Томск, 2019. – С. 123-124.

152. Мышкин В.Ф., Хорохорин Д.М., Хазан В.Л., и др. Способ создания сверхнизкочастотной - низкочастотной передающей антенны и установка для его осуществления. Патент РФ № 2717159, Опубл. 18.03.2020. Бюл. №8.

153. Koch J. et al. Femtosecond laser ablation: Visualization of the aerosol formation process by light scattering and shadowgraphic imaging // *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*. – 2010. – Т. 65. – №. 11. – С. 943-949.

154. Воробьев В. С. Плазма, возникающая при взаимодействии лазерного излучения с твердыми мишенями // *Успехи физических наук*. – 1993. – Т. 163. – №. 12. – С. 51.

155. Шопин В.М. Исследование процессов выделения дисперсного углерода из аэрозольных потоков // *Российский химический журнал*, 2007. - Т.60. - №4. – С.104-110

156. Анисимов М.П. Нуклеация: теория и эксперимент // *Успехи химии*, 2003. - Т.72. - №7. - С.664-705; <https://doi.org/10.1070/RC2003v072n07ABEN000761>

157. Павлов В. А., Скрипов В. П. Кинетика спонтанного зародышеобразования в сильно перегретых жидкостях // *ТВГ*, 1976. – 8. – С. 579-585.

158. Амелин А.Г. Теоретические основы образования тумана при конденсации пара. – М.: Химия, 1972. – 304 с.

159. Горелик А.Г., Амитин А.В. Десублимация в химической промышленности. - М.: Химия, 1986. - 272 с.

160. Laaksonen A., Talanquer V., and Oxtoby D.W. Nucleation: Measurements, Theory, and Atmospheric Applications // *Annu. Rev. Phys. Chem.* 1995. 46: 489-524.

161. Розанов Л.Н. Мономолекулярная физическая адсорбции в вакууме для энергетически неоднородных поверхностей // *Вакуумная техника и технология*, т.30(2020) № 1, стр. 6-10.

162. Франк-Каменецкий Д.А. Диффузия и теплопередача в химической кинетике. - М.: Наука, 1987. - 492 с.
163. Farley F. The Theory of the Condensation of Supersaturated Ion-Free Vapour // Proc. R. Soc. Lond. A 1952 212, 530-542; doi:10.1098/rspa.1952.0099.
164. Булярский С.В. Нуклеация кластеров катализаторов при росте углеродных нанотрубок // Журнал технической физики, 2011. - Том 81. - Вып. 11. - С.64-70.
165. Fletcher N.H. Size Effect in Heterogeneous Nucleation // J. Chem. Phys. 1958. V. 29. № 23. P. 572–576; doi:10.1063/1.1744540.
166. Смирнов Б.М. Процессы с участием кластеров и малых частиц в буферном газе // Успехи физических наук, 2011. Т. 181. № 7. С. 713.
167. Еремин А.В. Новая модель формирования углеродных наночастиц в процессах пиролиза за ударными волнами // Теплофизика высоких температур, 2013, том 51(5) 747–754; doi:10.7868/S0040364413040078.
168. Зельдович Я.Б., Бучаченко А.Л., Франкевич Е.Л. Магнитно-спиновые эффекты в химии и молекулярной физике // Успехи химических наук, 1988. – Т.155. - №1. - С.3-45.
169. David H. McIntyre Spin and Quantum Measurement, Oregon State University. – 77 p.
170. Myshkin V.F., Khan V.A., Tichy M., Kapran A., Izhoikin D.A., Lenskiy V.N., Gamov D.L., Leonteva D.A. Particularities of Cu and Zn nanoparticles formation in a magnetic field // AIP Conference Proceedings, 2019, 2101, 020023; doi:10.1063/1.5099615.
171. Myshkin V.F., Bespala E.V., Khan V.A., Makarevich S.V. Laws of the oxidation of carbon isotopes in plasma processes under magnetic field // IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering 135 (2016) 012029; doi:10.1088/1757-899X/135/1/012029.
172. Myshkin V.F., Tichy M., Khan V.A., Bespala E.V., Lenskiy V.N., Gamov D.L. Heterogeneous arc discharge plasma in a magnetic field // Russian Physics Journal, 2017. - Vol. 60. - No. 7. – P. 1099-1108; doi: 10.1007/s11182-017-1185-5.

Приложение А – Акт об использовании результатов исследований

УТВЕРЖДАЮ
 Проректор ТПУ
 по науке и трансферу технологий
 д.ф.-м.н.

Л.Г. Сухих
 21 » ноября 2022 г.

АКТ

об использовании результатов исследований, полученных при выполнении
 диссертации на соискание ученой степени к.ф.-м.н.
 Хорохорина Дмитрия Михайловича

Комиссия в составе:

председатель: заведующий кафедрой - руководитель отделения на правах
 кафедры, д.т.н., Горюнов А.Г.,

члены комиссии:

профессор отделения ядерно-топливного цикла, д.ф.-м.н.,
 Мышкин В.Ф.,

доцент отделения ядерно-топливного цикла, к.ф.-м.н., Дорофеева Л.И.,
 составили настоящий акт о том, что результаты экспериментального
 исследования по разработке метода лазерной очистки поверхностей
 металлов, выполненных по теме диссертационной работы: «Исследование
 очистки металлов и сварных швов от частиц мокс-топлива лазерным
 излучением», представленной на соискание ученой степени кандидата
 физико-математических наук, используются в отделении ядерно-топливного
 цикла Национального исследовательского Томского политехнического
 университета при преподавании следующих учебных дисциплин:
 «Лазерные изотопные технологии и лазерные методы диагностики»
 (гр. 0АМ01), «Физические методы анализа веществ и материалов»
 (гр. 0А01, 0А02, 0А03, 0А04, 0А05).

Использование указанных научных результатов в лекционных курсах и
 при выполнении лабораторного практикума позволяет повысить уровень
 подготовки магистров и бакалавров.

Председатель комиссии

А.Г. Горюнов

Члены комиссии:

В.Ф. Мышкин

Л.И. Дорофеева