

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ ИНТЕНСИВНОСТИ РАСПЫЛЕНИЯ ТОНКИХ УГЛЕРОДНЫХ ПЛЕНОК ОСКОЛКАМИ ДЕЛЕНИЯ УРАНА

В. А. Бродская, Г. В. Влох, В. Ю. Волгутов, С. В. Фролова

ФГУП «РФЯЦ-ВНИИЭФ», г. Саров Нижегородской обл.

Статья поступила в редакцию 06.06.2019, после доработки – 17.09.2019, принята к публикации – 04.10.2019

В работе представлены результаты исследований распыления осколками деления урана тонких углеродных пленок, изготовленных методом термического вакуумного напыления. Согласно проведенным исследованиям интенсивность распыления углеродных пленок в расчете на один осколок деления не превосходит  $\sim 50$  атомов, что говорит о возможности их использования в качестве защитных покрытий урановых слоев.

**Ключевые слова:** защитное покрытие, углеродные пленки, распыление осколками деления, атомно-силовая микроскопия.

### STUDY RESULTS FOR INTENSITY OF THIN CARBON FILMS SPUTTERING BY URANIUM FISSION FRAGMENTS / V. A. BRODSKAYA, G. V. VLOKH, V. Yu. VOLGUTOV, S. V. FROLOVA //

There are presented in the paper the results of investigating sputtering by uranium fission fragments of thin carbon films produced by a method of thermal vacuum deposition. In accordance with the investigations carried out the intensity of carbon films sputtering does not exceed  $\sim 50$  atom/fission fragments what indicates the possibility of their use as protective coating for uranium layers.

**Key words:** protective coating, carbon films, sputtering by uranium fission fragments, atomic-force microscopy.

### Введение

Распыление\* уранового слоя собственными осколками деления (ОД) является одной из основных причин деградации энерговыделяющих элементов (эвэлов) лазеров с ядерной накачкой (ЛЯН) [1]. Исследования, проведенные во ВНИИЭФ, позволили установить, что распыление уранового слоя ( $\sim 2,5$  мкм) в эвэлах происходит с интенсивностью  $K \sim 10^3$  атом/ОД. Нетрудно оценить, что при данном значении  $K$  уже при флюенсе тепловых нейтронов

$\sim 1^{18}$  см<sup>-2</sup> ( $\sim 0,05$  % выгорания урана) может быть распылено более половины уранового слоя эвэла. Ресурс эвэлов в этом случае определяется уносом массы урана с поверхности эвэла.

Уменьшать интенсивность распыления  $K$  (теоретический предел неупругого распыления  $K \sim 10$  атом/ОД) возможно двумя способами: изменением дисперсности поверхности уранового слоя; нанесением на урановый слой защитного покрытия. В настоящей работе приведены результаты расчетных и экспериментальных исследований, касающиеся второго из указанных способов.

Необходимо отметить, что в настоящее время в качестве защитного покрытия в эвэлах

\*Распыление уранового слоя собственными осколками деления в научной литературе часто обозначается термином эжекция.

используется алюминиевая пленка толщиной  $\sim 0,5$  мкм [1]. Однако обладая хорошей адгезией к урану и радиационной стойкостью к  $n$ - $\gamma$ -облучению, алюминиевая пленка снижает эффективность\* эвэлов на  $\sim 20\%$ \*\* [1]. Кроме того, согласно опубликованным данным, защитное алюминиевое покрытие, предохраняя уран от неупругого распыления, может само интенсивно ( $\sim 10^3$  атом/ОД) распыляться осколками деления [2].

Руководствуясь вышеизложенным, во ВНИИЭФ был проведен поиск материала для защитного покрытия урана от эжекции. На основании разработанной во ВНИИЭФ физической модели эжекции (ФМЭ) и анализа литературных данных был сделан вывод о перспективе использования в качестве эффективного защитного покрытия тонких углеродных пленок, наносимых на поверхность урана [3]. Углеродные пленки имеют сплошную структуру при малой толщине (от 1 нм) [4, 5]. Предварительные исследования показали, что пленки обладают механической прочностью и долговременной стабильностью характеристик. Циклическое воздействие температуры (до  $+100$  °С), а также продолжительное хранение (в течение  $\sim 1$  года) в агрессивной газовой среде не приводит к заметным изменениям их свойств. Преимущественно аморфная структура и слабо выраженные неровности поверхности с характерной высотой от 5 до 10 нм и «диаметром» основания  $> 100$  нм позволили предположить отсутствие в них интенсивного неупругого распыления.

## Результаты теоретических исследований

Согласно ФМЭ при прохождении ОД через кристаллическое зерно на поверхности урана возможны следующие механизмы неупругого распыления [3]:

\*Доля энергии, выносимая осколками деления из эвэла в газ.

\*\*Более тонкие ( $< 0,1$  мкм) алюминиевые пленки, как правило, обладают сквозной пористостью.

– распыление атомов урана с поверхности в месте выхода ОД (кулоновский механизм эжекции), максимальная эжекция  $\sim 50$  атом/ОД;

– отрыв целого кристаллического зерна (кластера) с поверхности урана вследствие процессов, происходящих на внутренней границе зерна при пересечении ее ОД (кластерный механизм). Максимально возможный «радиус» отрываемого зерна составляет  $R_{\text{пред}} = 10$  нм (при энергии ОД 100 МэВ), максимальная эжекция  $\sim 2 \cdot 10^5$  атом/ОД;

– сублимация зерна вследствие объемного разогрева ионной решетки зерна (испарительный механизм эжекции). Предельный «радиус» зерна, которое может быть испарено при прохождении ОД с энергией 100 МэВ, составляет  $R_{\text{пред}} = 8$  нм, максимальная эжекция  $\sim 10^5$  атом/ОД.

Общая интенсивность неупругого распыления урана определяется суммой указанных механизмов с соответствующим вкладом каждого.

В рамках ФМЭ количество атомов урана  $d^4K(E, r, \Omega, \varepsilon)$ , распыленных ОД с энергией от  $E$  до  $E + dE$  из кластера радиусом от  $r$  до  $r + dr$  и двигающихся в направлении от  $\Omega$  до  $\Omega + d\Omega$  с энергией от  $\varepsilon$  до  $\varepsilon + d\varepsilon$ , рассчитывается следующим образом:

$$d^4K(E, r, \Omega, \varepsilon) = n_{\text{класт}} S(E, r, \Omega, \varepsilon) \sigma(r) \times \varphi(E) f(r) dE dr d\Omega d\varepsilon, \quad (1)$$

где  $n_{\text{класт}}$  – плотность поверхностных кластеров;  $\sigma(r)$  – максимальная площадь сечения кластера;  $\varphi(E)$  – спектр ОД на поверхности урана;  $f(r)$  – плотность распределения кластеров по размерам;  $S(E, r, \Omega, \varepsilon)$  – дважды дифференциальная плотность эжекции для конкретного механизма распыления. Явный вид функции для разных механизмов распыления приведен в работе [3].

Для определения интенсивности распыления урана в эвэле с защитным покрытием  $K_{\text{защ}}$  используется понятие проницаемости защитного покрытия  $P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t)$ , определяемой как отношение количества атомов урана,

прошедших покрытие толщиной  $t$ , к количеству атомов, распыленных без покрытия:

$$d^4 K_{\text{защ}}(E, r, \Omega, \varepsilon, t) = P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) d^4 K(E, r, \Omega, \varepsilon). \quad (2)$$

Тогда для интенсивности распыления эвэла с защитным покрытием получим выражение

$$K_{\text{защ}}(t) = n_{\text{клас}} \times \int \int \int S(E, r, \varepsilon, \Omega) P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) \varphi(E) f(r) \sigma(r) dE dr d\Omega d\varepsilon. \quad (3)$$

Предполагая независимость энергетических, пространственных и угловых распределений, получим

$$K_{\text{защ}}(t) = K P_{\text{защ}}(t), \quad (4)$$

где  $P_{\text{защ}}(t) = \int_{\Omega, \varepsilon} P_{\text{защ}}(\Omega, \varepsilon, t) \Omega(\Omega) \varepsilon(\varepsilon) d\Omega d\varepsilon$  –

средняя проницаемость защитного покрытия толщиной  $t$ ;  $\Omega(\Omega)$ ,  $\varepsilon(\varepsilon)$  – угловое и энергетическое распределения распыленных атомов.

Таким образом, для определения интенсивности распыления эвэла с защитным покрытием необходимо знать функцию  $P_{\text{защ}}(t)$ . Гипотетический вид зависимости проницаемости покрытия от его толщины показан на рис. 1.

Защитное покрытие распыляется ОД по мере выгорания урана в эвэле, и его толщина монотонно уменьшается,

$$dt = - \frac{dN_{\text{защ}}}{n_{\text{защ}}}, \quad (5)$$

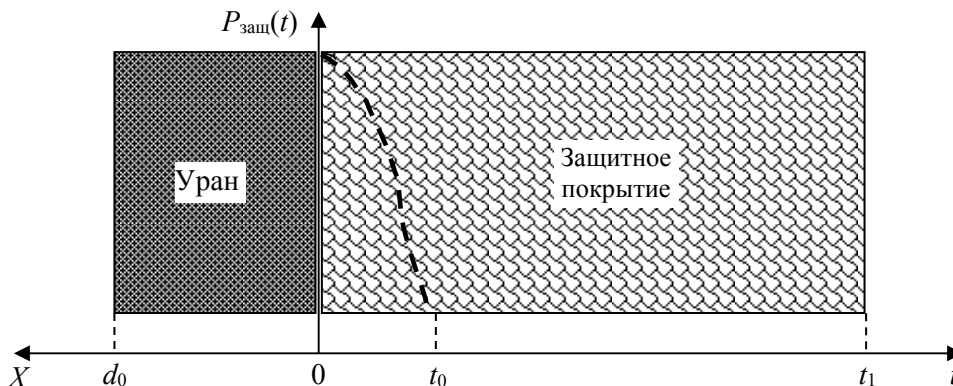


Рис. 1. Геометрическая схема эвэла с защитным покрытием

где  $N_{\text{защ}}$  – количество атомов, распыленных с поверхности покрытия,  $\text{см}^{-2}$ ;  $n_{\text{защ}}$  – концентрация атомов в материале покрытия,  $\text{см}^{-3}$ .

Распыление связано с флюенсом ОД на свободной поверхности покрытия соотношением

$$dN_{\text{защ}} = K_C dF_{\text{ОД}}, \quad (6)$$

где  $K_C$  – коэффициент распыления углеродной пленки;  $dF_{\text{ОД}} = d_{235}(w) n_{235}(0) \times$

$\times \left( 1 - \frac{d_{235}(w)}{2R_{235}} \right) dw$  [7];  $d_{235}(w)$  – толщина урана в эвэле при данном выгорании  $w$ ;  $n_{235}(0)$  – начальная концентрация атомов урана,  $\text{см}^{-3}$ ;  $R_{235}$  – пробег среднего ОД в уране.

Несложно получить выражение для толщины защитного покрытия по мере выгорания урана в эвэле:

$$t(w) \approx t_0 - K_C \frac{n_{235}(0)}{n_{\text{защ}}} d_0 \left( 1 - \frac{d_0}{2R_{235}} \right) w, \quad (7)$$

где  $d_0$  – начальная толщина слоя урана.

На рис. 1 показаны три характерные толщины защитного покрытия:  $t = t_0$  – начальная толщина;  $t = t_1$  – защитное покрытие становится проницаемым для распыленных атомов урана при  $t < t_1$ ;  $t = 0$  – покрытие отсутствует ( $P(0) = 1$ ). В соответствии с этим имеются три характерных значения выгорания урана:  $w = 0$  (соответствует  $t_0$ );  $w = w_1$  (соответствует  $t_1$ );  $w = w_0$  (соответствует полному распылению покрытия,  $t = 0$ ).

Оценим начальное выгорание  $w_0$  для защитного углеродного покрытия толщиной  $t_0 \sim 100$  нм. В эвэлах используются слои урана толщиной  $d_0 \sim 2,5$  мкм. Подставляя в формулу (7)  $R_{235} \sim 5,5$  мкм [6],  $n_{235}(0) \sim 5 \cdot 10^{22}$  см $^{-3}$ ,  $n_{\text{защ}} = n_C \sim 8 \cdot 10^{22}$  см $^{-3}$ , получим

$$\frac{t(w)}{t_0} \approx 1 - 0,5K_C \frac{d_0}{t_0} w, \quad 0 < w < w_0,$$

$$w_0 = \frac{1}{0,5K_C} \frac{t_0}{d_0} \approx \frac{0,08}{K_C}. \quad (8)$$

Видно, что решающую роль, с точки зрения защитных свойств покрытия, играет значение коэффициента распыления углеродной пленки  $K_C$ .

Из сказанного выше ясно, что, пока выгорание не превышает значения  $w_0$ , урановый слой будет распыляться незначительно, поскольку проницаемость покрытия для распыленных частиц в среднем мала. При  $w > w_0$  (покрытие отсутствует) распыление урана идет интенсивно,  $K_{235} \sim 1000$  атом/ОД.

Общая зависимость толщины уранового слоя от выгорания получена из выражения

$$d(d_{235}) = -K_{235}(w)d_{235}(w) \left( 1 - \frac{d_{235}(w)}{2R_{235}} \right) dw, \quad (9)$$

где  $K_{235}(w) = \text{const} = 0$  при  $w < w_1$ ;  $K_{235}(w) = \text{const} = K_{235}$  при  $w > w_0$ .

Для интервала  $w_1 < w < w_0$  используется линейное приближение

$$K_{235}(w) = \langle K_{235} \rangle (w - w_1), \quad w_1 < w < w_0, \quad (10)$$

где

$$\langle K_{235} \rangle \equiv \frac{K_{235}}{(w_0 - w_1)};$$

$$w_0 \approx \frac{t_0}{K_C \frac{n_{235}(0)}{n_{\text{защ}}} d_0 \left( 1 - \frac{d_0}{2R_{235}} \right)};$$

$$w_1 \equiv \frac{1}{0,5K_C} \frac{t_0}{d_0} \left( 1 - \frac{t_1}{t_0} \right), \quad t_0 > t_1.$$

Интегрируя выражение (9), получим

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(0)} = 1, \quad w < w_1, \quad (11)$$

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(0)} = \frac{1}{p_0/2 + (1 - p_0/2) \exp\left(0,5 \langle K_{235} \rangle (w - w_1)^2\right)},$$

$$w_1 < w < w_0, \quad (12)$$

$$\frac{d_{235}(w)}{d_{235}(w_0)} = \frac{1}{p(w_0)/2 + (1 - p(w_0)/2) \exp\left(K_{235} (w - w_0)\right)},$$

$$w > w_0, \quad (13)$$

где  $p_0 \equiv \frac{d_{235}(0)}{R_{235}}$ ;  $p(w_0) \equiv \frac{d_{235}(w_0)}{R_{235}}$ .

Полученная функция полностью определена при известных значениях величин  $w_1$ ,  $w_0$ ,  $\langle K_{235} \rangle$ , которые в свою очередь определяются проницаемостью защитного покрытия  $P_{\text{защ}}(t)$  и интенсивностью его распыления. Таким образом, для оценки защитных свойств покрытия необходимо знание интенсивности его распыления и проницаемости  $P_{\text{защ}}(t)$ .

Функция  $P_{\text{защ}}(t)$  определена в рамках ФМЭ при наиболее неблагоприятных условиях для испарительного и кластерного механизмов распыления урана. Кулоновский механизм характеризуется низкой интенсивностью, поэтому не принимался во внимание.

Максимально возможная проницаемость  $P_{\text{защ}}(t)$  защитного углеродного покрытия в случае испарения зерна урана с поверхности и при отрыве целого кластера урана показана на рис. 2 и 3.

Как видно, проницаемость при кластерном механизме значительно ниже, поэтому для оценок ресурса эвэлов «снизу» использовалась проницаемость защитного покрытия, полученная для испарительного механизма эжекции. Видно также, что углеродное покрытие становится непроницаемым для распыленных атомов урана при толщине от 20 нм (рис. 2).

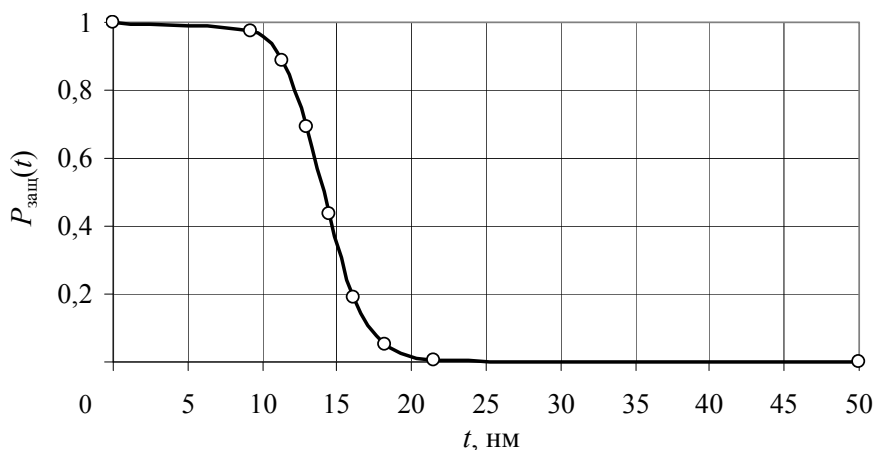


Рис. 2. Проницаемость защитного углеродного покрытия для атомов урана (расчет, испарительный механизм распыления урана,  $E_{\text{ОД}} = 100$  МэВ)

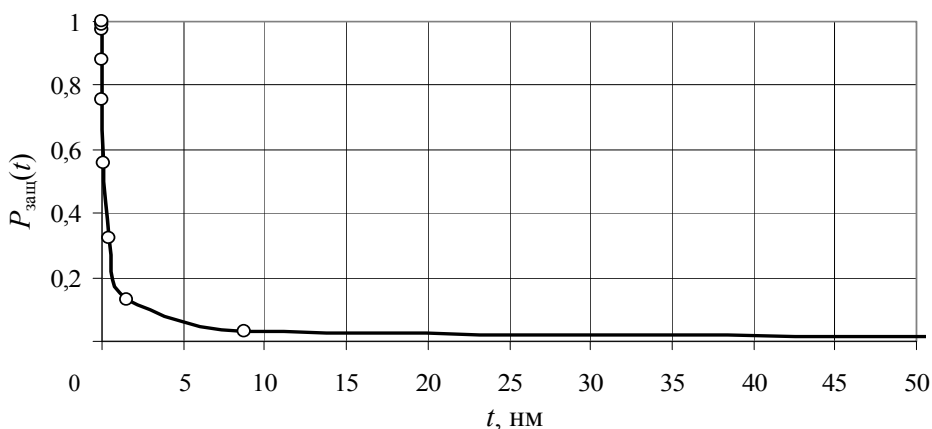


Рис. 3. Проницаемость защитного углеродного покрытия для атомов урана (расчет, кластерный механизм распыления урана,  $E_{\text{ОД}} = 100$  МэВ)

Для определения интенсивности распыления защитного углеродного покрытия  $K_C$  были проведены экспериментальные исследования.

### Результаты экспериментальных исследований

В экспериментах исследовались образцы углеродных пленок толщиной от 20 до 70 нм, изготовленные методом вакуумного термического напыления [5]. Для исследований было изготовлено 62 образца с площадью поверхности каждого  $\sim 80$  мм<sup>2</sup>.

В качестве источников осколков деления использовались окисные слои урана, изготовленные во ВНИИЭФ в 1989 году методом

осаждения из паровой фазы. Слои располагались на расстоянии около 1 мм от поверхности исследуемых образцов.

В качестве источника нейтронов, под действием которых в урановых слоях образуются осколки деления, использовался водный импульсный реактор ВИР-2М [7]. Облучение образцов проводилось в центральном канале реактора в статическом режиме. Флюенс осколков деления на поверхности исследуемых образцов составлял от  $\sim 6 \cdot 10^{11}$  до  $\sim 5 \cdot 10^{12}$  см<sup>-2</sup>.

Интенсивность распыления углеродных пленок определялась по результатам измерений характеристик поверхности образцов до и после облучения на атомно-силовом микроскопе (АСМ) следующим образом:

$$K_C = \frac{n_C}{n_{\text{ОД}}} = \frac{n_0 V_{\Sigma}}{N_{\text{ОД}} S_{\text{скан}}}, \quad (14)$$

где  $n_C$  – количество вырванных атомов углерода в пределах скана\*;  $n_{\text{ОД}}$  – количество ОД на поверхности образца в пределах скана;  $n_0 \cong 85$  атом/нм<sup>3</sup> – плотность атомов углерода в пленке;  $V_{\Sigma}$  – суммарный (реальный) объем вырванных кластеров в пределах скана, нм<sup>3</sup>;  $N_{\text{ОД}}$  – флюенс осколков деления на поверхности пленки, ОД/см<sup>2</sup>;  $S_{\text{скан}}$  – площадь скана, см<sup>2</sup>.

Для нахождения в формуле (14) величины  $V_{\Sigma}$  в работе применены различные статистические и методологические подходы при исследовании рельефа исходных и облученных образцов, на основании которых сделан вывод о том, что кластерное распыление углеродной пленки ОД имеет место. На рис. 4 представлены типичные АСМ-изображения поверхности углеродной пленки до и после облучения потоком ОД урана (увеличение  $\sim 70\,000$ ). Значение коэффициента распыления  $K_C$  по результатам АСМ-измерений составило от  $\sim 10$  до  $\sim 45$  атом/ОД.

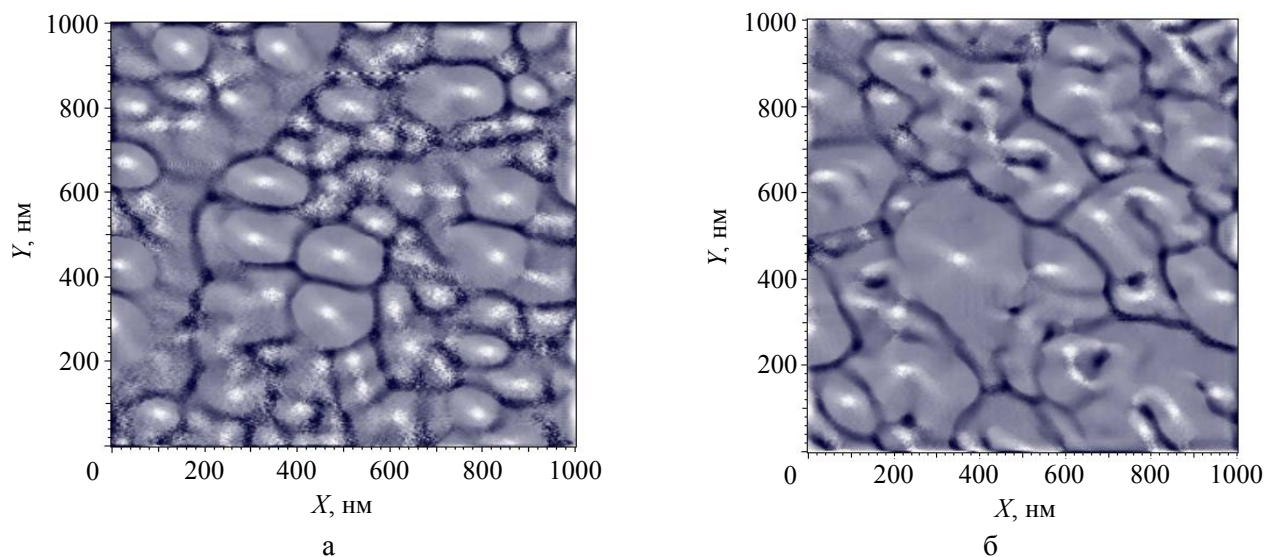


Рис. 4. АСМ-изображения поверхности углеродной пленки (образец № 42) до облучения (а) и после него (б)

\*Участок поверхности, анализируемый в микроскопических исследованиях на АСМ. При каждом новом измерении скан (1×1) мкм<sup>2</sup> выбирается на поверхности образца в пределах локализованного скана (50×50) мкм<sup>2</sup>.

Необходимо отметить также, что в ходе экспериментальных работ определена форма кластеров углеродной пленки. В отличие от кластеров урана кластеры углеродной пленки представляют собой эллипсоиды вращения с радиусом  $r$  и высотой  $H$ . Значение  $\beta = H/r$  для крупных кластеров близко к 0,2, для мелких кластеров данное отношение еще меньше. Максимальный размер кластера соответствует  $r_{\text{max}} \sim 35$  нм,  $H_{\text{max}} \sim 8$  нм.

### Расчетный ресурс эвэлов с защитным углеродным покрытием

Результаты проведенных исследований позволили оценить ресурс эвэлов с защитным углеродным покрытием. Оценка ресурса проводилась «снизу» при следующих предположениях: все ОД в урановом слое эвэла рождаются с энергией, близкой к максимальной энергии,  $E_{\text{ОД}}=100$  МэВ; ОД, попадая в поверхностный кластер защитного углеродного покрытия, проходит через его центр.

Под ресурсом эвэла полагаем такое выгорание  $w_{0,3}$ , при котором расплывается 30 % исходного урана ( $\delta = 0,3$ ). Результаты расчетов представлены на рис. 5. Там же показан критериальный уровень расплывания  $\delta = 0,3$  и область выгорания урана (штриховка), когда на деградацию эвэлов помимо эжекции начинают влиять радиационные процессы в урановом слое ( $w > 1\%$ ). Очевидно, что снижать влияние эжекции на ресурс эвэлов при выгорании более 1 % не имеет смысла.

В таблице для сравнения представлены расчетные значения ресурса  $w_{0,3}$  и эффективности эвэлов в зависимости от материала защитного покрытия [6].

Как видно, углеродное покрытие обеспечивает многократное увеличение ресурса эвэлов по сравнению с алюминиевым покрытием, используемым в эвэлах в настоящее время.

### Заключение

Результаты экспериментальных и теоретических исследований, приведенные в настоящей работе, показывают, что углеродные пленки, изготовленные методом термического вакуумного напыления, могут быть использованы в целях повышения ресурса эвэлов ЛЯН.

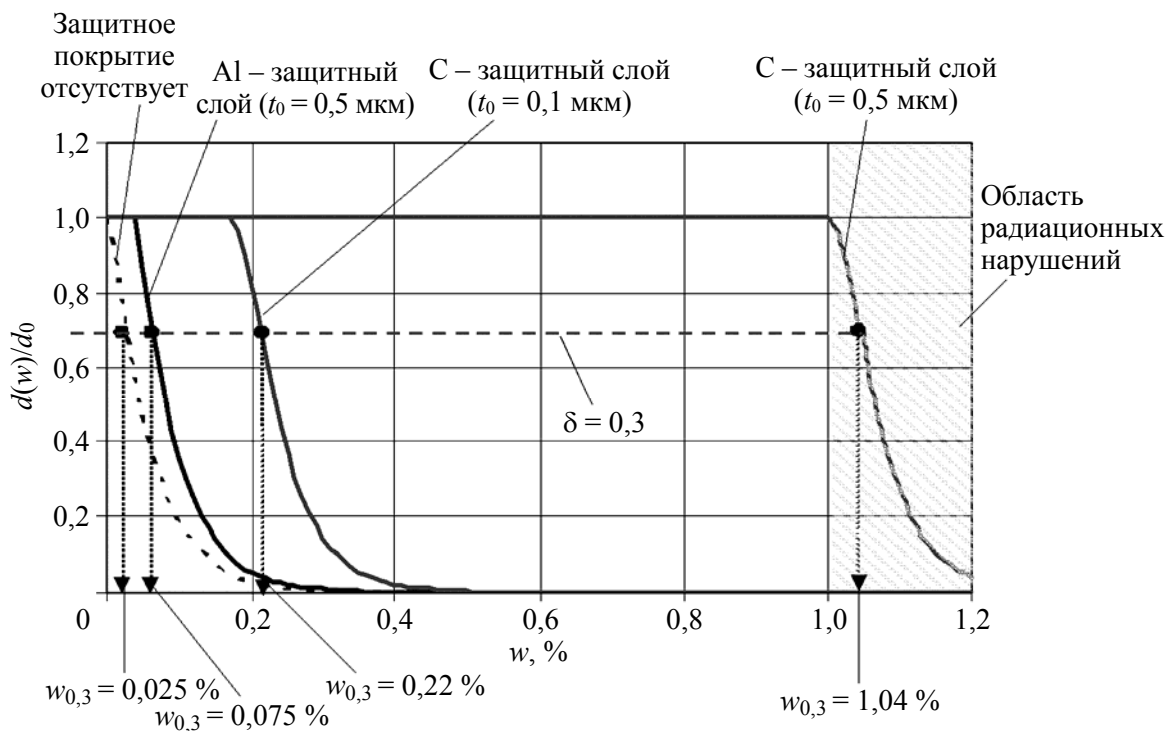


Рис. 5. Изменение толщины уранового слоя при выгорании урана в эвэле

### Расчетные оценки ресурса и эффективности эвэлов с защитным покрытием

Материал покрытия	Толщина $t_0$ покрытия, нм	$w_{0,3}$ , %	$w_{0,3}$ , отн. ед.	Эффективность эвэла	Эффективность, отн. ед.
Отсутствует	–	0,025	1	0,192	1
Углерод	100	0,22	~9	0,185	0,96
Углерод	500	1,04	~42	0,164	0,85
Алюминий	500	0,075	~3	0,159	0,83

В ходе работы установлено, что защитное углеродное покрытие толщиной ~20 нм практически полностью предотвращает распыление урана. Интенсивность распыления углеродных пленок, определенная в экспериментах на ИЯР ВИР-2М, не превосходит 50 атом/ОД.

Показано, что углеродное покрытие обеспечивает многократное увеличение ресурса эвэла по сравнению с алюминиевой пленкой. При одинаковой толщине (0,5 мкм) защитное углеродное покрытие увеличивает ресурс эвэла в ~40 раз, алюминиевое покрытие – в ~3 раза. Снижение эффективности эвэла в обоих случаях примерно одинаковое.

### Список литературы

1. Влох Г. В., Казаков Л. Л., Косулин Н. С., Синянский А. А., Филиппов Г. Э., Череватюк В. Н. Пленочные энерговыделяющие элементы для лазеров с ядерной накачкой // Труды II Международной конференции «Физика ядерно-возбуждаемой плазмы и проблемы лазеров с ядерной накачкой». – Арзамас-16: ВНИИЭФ, 1995. Т. 2, с. 47–50.

2. Баранов И. А., Мартыненко Ю. В. Цепелевич С. О., Явлинский Ю. Н. Неупругое распыление твердых тел ионами // Успехи физических наук. 1988. Т. 156, вып. 3, с. 478–510.

3. Влох Г. В., Фролова С. В. Модельный вид функций, описывающих эжекцию при неупругом распылении урана собственными осколками деления // Труды IV Международной конференции «Физика лазеров с ядерной накачкой и импульсные реакторы». – Обнинск: ФЭИ, 2009. Т. 1, С. 375–382.

4. Горелик С. С., Расторгуев Л. Н., Скаков Ю. А. Рентгенографический и электронно-оптический анализ. – М.: Металлургия, 1970.

5. Техника электронной микроскопии / Под ред. Д. Кэя. – М.: Мир, 1965.

6. Казазян В. Т., Литвиненко Б. А., Рогинец Л. П., Савушкин И. А. Физические основы использования кинетической энергии осколков деления в радиационной химии. – Минск: Наука и техника, 1972.

7. Воинов А. М., Колесов В. Ф., Мавеевко А. С. и др. Водный импульсный реактор ВИР-2М и его предшественники // ВАНТ. Сер. Физика ядерных реакторов, 1990, вып. 3, с. 3–15.

Контактная информация –

Фролова Светлана Владимировна,  
ведущий научный сотрудник ИЯРФ,  
РФЯЦ-ВНИИЭФ,  
e-mail: otd4@expd.vniief.ru

Вопросы атомной науки и техники. Сер. Физика ядерных реакторов, 2019, вып. 4, с. 106–113.