

СПЕКТРАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ПЛАЗМЫ ПРИ ЭЛЕКТРОДУГОВОМ ВОЗДЕЙСТВИИ НА ПОРОШОК CaCO_3 ДЛЯ ИМИТАЦИИ ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИХ ПРОЦЕССОВ ПЛАЗМЕННОЙ СЕПАРАЦИИ ОЯТ

С.В. Шарый, В.Б. Юферов, М.О. Швец, В.И. Ткачев, В.О. Ильичева, А.Н. Шановал
*Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина*
E-mail: v.yuferov@kipt.kharkov.ua

Представлены результаты экспериментальных исследований плазмы, получаемой при электродуговом воздействии на порошок CaCO_3 с естественным и очищенным химическим составами. Показано, что наличие примесей в естественном CaCO_3 приводит к увеличению разрядных токов, необходимых для получения ионов Ca^+ более чем вдвое. Анализ спектра излучения плазмы для CaCO_3 без примесей показал, что при увеличении мощности разряда растет степень ионизации плазмы с увеличением концентрации однозарядных ионов кальция за счет диссоциации и ионизации молекулярных компонентов.

ВВЕДЕНИЕ

Магнетоплазменная переработка отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) предполагает перевод многокомпонентного состава ОЯТ в плазму. При нагреве ОЯТ до $2500\text{ }^\circ\text{C}$ можно вывести до 75% продуктов деления (ПД). К таким ПД относятся оксиды, у которых $\varepsilon_i/\varphi_i < 1$, где ε_i – энергия диссоциации, а φ_i – энергия ионизации, равная потенциалу ионизации. Оксиды, у которых $\varepsilon_i/\varphi_i > 1$, что характерно для оксидов актиноидов, лантаноидов, циркония и ниобия, определяют основные компоненты смеси ОЯТ при переводе ее в плазму [1].

В плазме ОЯТ присутствуют атомарно-молекулярные и ионно-молекулярные компоненты ядерного топлива и ПД, большинство из которых содержит кислород. Создание многокомпонентной низкотемпературной оксидной плазмы с высокой степенью ионизации [2–4] является сложной задачей.

Целью данной работы является отработка методики создания многокомпонентной оксидной плазмы из порошкообразных веществ с использованием оптической диагностики для определения ее состава.

С практической точки зрения, эта методика представляет также интерес для нанесения оксидных покрытий ионно-плазменным методом.

Исследования целесообразно проводить на материалах–имитаторах ОЯТ. Критерием при выборе имитационной среды является близость физико-химических свойств имитационного материала к ОЯТ [1, 5].

Большинство оксидных соединений, как и оксид урана, находится в порошкообразном состоянии. Кроме того, обрабатываемое вещество в виде порошка приводит к повышению эффективности сепарации и скорости удаления нежелательных примесей [1]. Исходя из этого, в качестве рабочего вещества для экспериментов был выбран многокомпонентный оксид CaCO_3 .

1. ЭКСПЕРИМЕНТ

Предварительные эксперименты проводились при электродуговом воздействии на порошок CaCO_3 с размером частиц ~ 10 мкм. Использование кальция для имитации урана целесообразно вследствие близости потенциалов ионизации кальция к потенциалам ионизации урана (не только первого потенциала ~ 6 В, но и второго ~ 12 В). Эксперименты проводились на макете двухступенчатого плазменного источника [3, 4]. Порошок CaCO_3 помещался в тигель – анод. В результате дугового разряда тигель и его содержимое нагревались, при достижении температуры $900\dots 1000\text{ }^\circ\text{C}$ происходил распад карбоната кальция на оксид кальция и углекислый газ: $\text{CaCO}_3 = \text{CaO} + \text{CO}_2 \uparrow$, и элементы распада поступали в разряд.

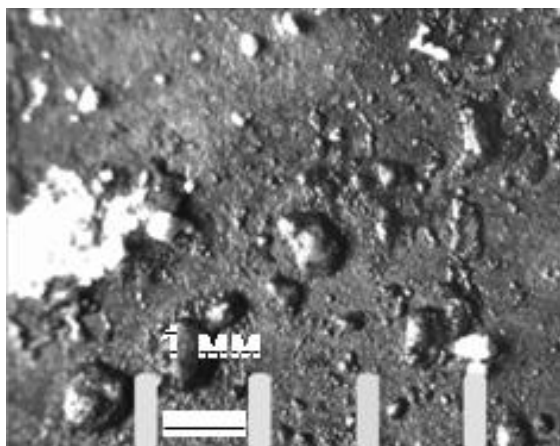
Метод получения оксидной плазмы с использованием карбонатов оправдан, поскольку температура распада карбоната кальция значительно ниже температуры плавления оксида CaO ($T_{\text{пл}} = 2572\text{ }^\circ\text{C}$). Это позволяет снизить энергозатраты, уменьшить тепловую нагрузку на установку и получить плазму в парах CaO без предварительного перевода рабочего вещества в жидкую фазу.

После установления режима горения разряда фиксировался спектр свечения плазмы разряда в верхнем сечении вакуумной камеры на расстоянии 30 см от анода по оси.

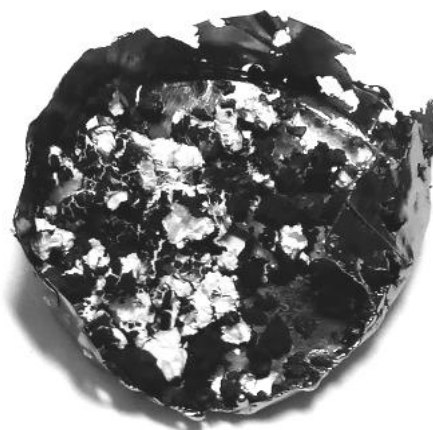
В экспериментах использовались два вида тиглей радиусом 2 см, в которые помещался карбонат кальция (рис. 1,а): вольфрамовый тигель ($T_{\text{пл}} = 3422\text{ }^\circ\text{C}$) с природным карбонатом кальция (см. рис. 1,б) и ниобиевый тигель ($T_{\text{пл}} = 2477\text{ }^\circ\text{C}$) с очищенным карбонатом кальция. При работе с плоским вольфрамовым тиглем в процессе разогрева происходил сильный разброс рабочего материала по объему вакуумной камеры, снижающий эффективность использования карбоната кальция и уменьшающий продолжительность экспериментов. Переход к ниобиевому тиглю в форме стаканчика в основном решил эту проблему. На обоих тиглях видны остатки рабочего вещества. На вольфрамовом тигле видны продукты

распада после разряда на естественном карбонате кальция, на ниобиевом тигле – после разряда с очищенным CaCO_3 . В первом случае (см. рис. 1,а) видны белые остатки CaCO_3 и спекшиеся темно-серые кап-

ли продуктов распада, во втором (см. рис. 1,б) – белые остатки CaCO_3 и более темные рыхлые остатки продуктов распада.



а



б

Рис. 1. Вольфрамовый тигель после разряда с естественным CaCO_3 (а), ниобиевый тигель после разряда с очищенным CaCO_3 (б)

1.1. РАЗРЯД С ЕСТЕСТВЕННЫМ КАРБОНАТОМ КАЛЬЦИЯ

Мел – естественный (природный) карбонат кальция. Основу химического состава мела составляет карбонат кальция с небольшим количеством карбоната магния, но обычно присутствует и некарбонат-

ная часть примесей, в основном оксиды металлов, CaSO_4 , кварц и др.

Ниже приведена спектрограмма свечения плазмы при разряде с естественным карбонатом кальция (рис. 2).

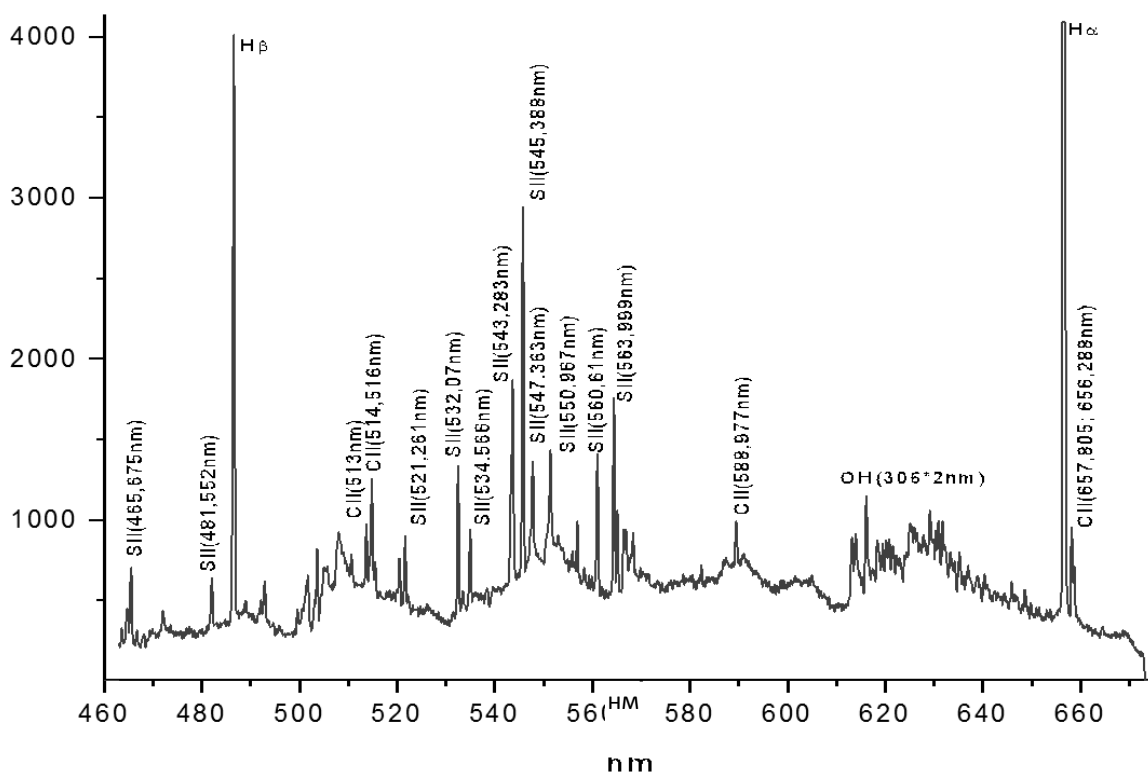


Рис. 2. Спектрограмма свечения плазмы при разряде с естественным CaCO_3 : разрядный ток $I = 20$ А, напряжение $U = 90$ В, давление $P = 5 \cdot 10^{-3}$ Торр

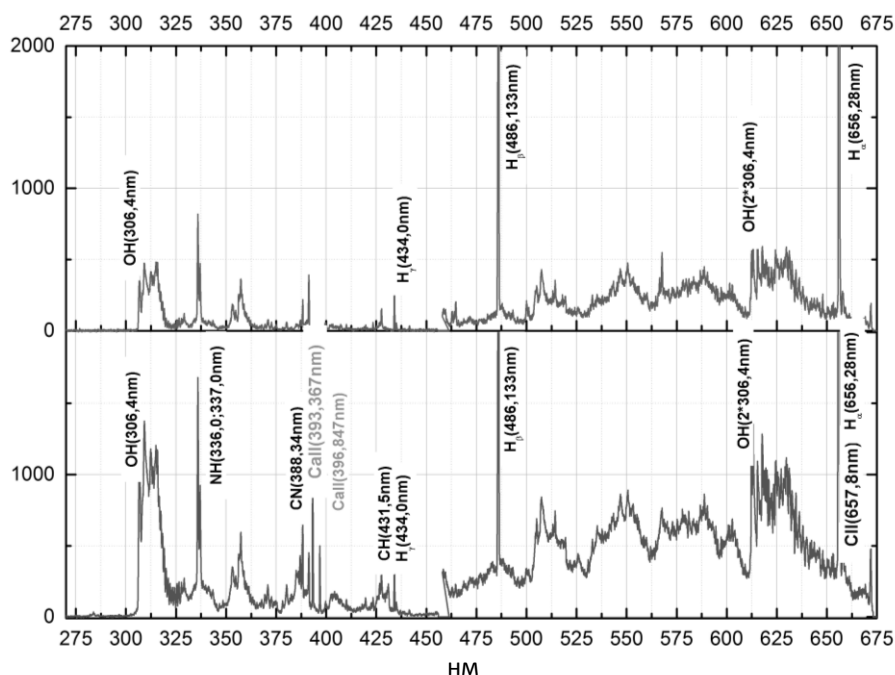


Рис. 3. Спектры свечения плазмы при разряде с очищенным CaCO_3 .
 Верхний спектр: разрядный ток $I = 5 \text{ A}$; напряжение $U = 90 \text{ B}$; давление $P = 3 \cdot 10^{-4} \text{ Торр}$.
 Нижний спектр: разрядный ток $I = 10 \text{ A}$; напряжение $U = 90 \text{ B}$; давление $P = 3 \cdot 10^{-3} \text{ Торр}$

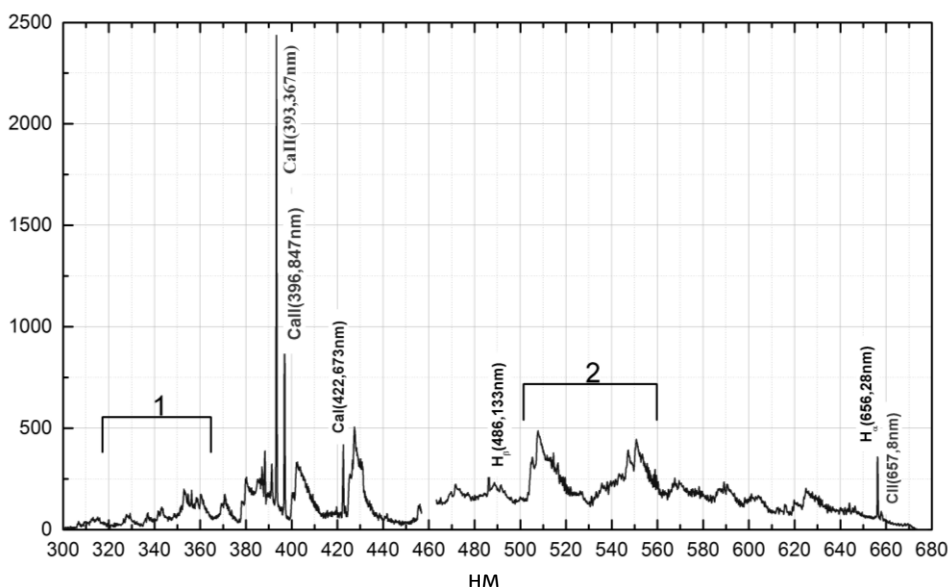


Рис. 4. Спектр свечения плазмы при разряде с очищенным CaCO_3 :
 разрядный ток $I = 18 \text{ A}$; напряжение $U = 150 \text{ B}$; давление $P = 7 \cdot 10^{-3} \text{ Торр}$

1.2. РАЗРЯД С ОЧИЩЕННЫМ КАРБОНАТОМ КАЛЬЦИЯ

На рис. 3 показаны спектры свечения плазмы CaCO_3 при разрядных токах 5 и 10 А. При токах разряда 5 А на спектре (как следствие недостатка вводимой в разряд энергии) не наблюдаются линии возбужденных ионов CaII , а вся картина представлена линиями воды, водорода и прочих примесей. Однако уже при токах разряда 10 А в спектре появляются две линии однозарядных ионов CaII (393,367; 396,847 нм) и однозарядных ионов CII (657,8 нм), что не наблюдалось при разряде с естественным CaCO_3 даже при токах 20 А.

На рис. 4 представлен спектр плазмы при токе разряда 18 А. Как видно, увеличение мощности,

вводимой в разряд, привело к увеличению степени ионизации, значительному снижению пиков воды и примесей. На спектре явно видны пики однозарядных ионов CaII (393,367; 396,847 нм), появилась линия атомарного Ca (422,673 нм), незначительно прослеживается линия ионов C (657,8 нм). Диапазон пиков свечения, выделенный скобкой 1, предположительно соответствует линиям CO_2 , а скобкой 2 – линиям CaO . Наличие серы (см. рис. 2) привело к существенному росту тока разряда без появления линий, связанных с ионами CaII .

Соотношение ϵ_i/ϕ_i для оксидных компонент плазмы влияет на перераспределение концентраций между ионными компонентами и отображение соответствующих линий в спектре свечения плазмы.

При $\varepsilon_i/\varphi_i < 1$ происходит диссоциация оксидов, последующая ионизация и получение линий в спектре, соответствующих атомарным ионам; при $\varepsilon_i/\varphi_i > 1$ происходит ионизация оксидов и получение линий в спектре, соответствующих молекулярным ионам.

При сравнении рис. 3 и 4 видно, что увеличение мощности разряда ведет к увеличению интенсивности линий ионов кальция с уменьшением интенсивностей линий молекулярного спектра и линий углерода. Это связано с тем, что для оксида кальция при $\varepsilon_i/\varphi_i < 1$ энергия дополнительно расходуется на процессы диссоциации перед ионизацией кальция, и количество оксидных молекулярных компонент в спектре плазмы уменьшается. При этом температура электронов в плазме больше φ_i и по предварительным оценкам составляет $T_e \sim 7$ эВ. Этот факт необходимо учесть при имитации ядерного топлива, так как уран имеет сильную связь с кислородом ($\varepsilon_i/\varphi_i > 1$) и в отличие от оксида кальция при температурах электронов 5...7 эВ содержится в плазме в основном в виде оксидных компонент.

ВЫВОДЫ

Рассмотрены особенности, возникающие при проведении экспериментов с плазмой, полученной при электродуговом воздействии на порошок CaCO_3 . В экспериментах с очищенным карбонатом кальция спектральные исследования показали, что увеличение мощности разряда ведет к увеличению интенсивности линий ионов кальция с уменьшением интенсивности линий молекулярного спектра и углерода. В эксперименте с естественным карбонатом кальция показано, что для получения однозарядных ионов кальция, который имитирует уран, требуются разрядные токи больше чем вдвое по сравнению с очищенным карбонатом кальция. Отсюда следует, что наличие примесных компонентов в плазме существенно влияет на энергозатраты,

идущие на химические реакции и ионизацию, что указывает на необходимость перед стадией ионизации предварительной очистки ОЯТ от ПД на стадии нагрева при магнитоплазменной переработке ОЯТ.

БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. В.Б. Юферов, В.В. Катречко, В.О. Ильичева, С.В. Шарый, А.С. Свичкар, М.О. Швец, Е.В. Муфель, А.Г. Бобров. Развитие концепции многостадийной очистки отработавшего ядерного топлива от продуктов деления физическими методами // *ВАНТ. Серия «Вакуум, чистые материалы, сверхпроводники»*. 2018, №1(113), с. 118-126.
2. V.B. Yuferov, S.V. Shariy, M.O. Shvets, A.N. Ozerov. Gas-metal plasma source project for the separation technology // *PAST. Series "Nuclear Physics Investigations"*. 2014, N 5(93), p. 184-187.
3. S.V. Shariy, V.B. Yuferov, M.O. Shvets, V.I. Tkachov, V.V. Katrechko. Magnetic field influence on the discharge parameters of two-stage gas-metal plasma source // *PAST. Series "Plasma Physics" (22)*. 2016, N 6, p. 191-194.
4. V.B. Yuferov, S.V. Shariy, T.I. Tkachova, V.V. Katrechko, A.S. Svichkar, V.O. Ilichova, M.O. Shvets, E.V. Mufel. Calculations of ion trajectories at magnetoplasma separation and experiments with polyatomic gases // *Acta Polytechnica*. 2017, v. 57(1), p. 71-77; doi:10.14311/AP.2017.57.0071.
5. Р.Х. Амиров, Н.А. Ворона, А.В. Гавриков, С.Н. Жабин, Г.Д. Лизякин, В.П. Полищук, И.С. Самойлов, В.П. Смирнов, Р.А. Усманов, И.М. Ярцев. Экспериментальное исследование процессов вакуумно-дугового испарения и ионизации вещества (гадолиния), моделирующего уран, для разработки технологии плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива // *Труды МФТИ*. 2014, т. 6, №1.

Статья поступила в редакцию 02.03.2018 г.

СПЕКТРАЛЬНІ ДОСЛІДЖЕННЯ ПЛАЗМИ ПРИ ЕЛЕКТРОДУГОВІЙ ДІЇ НА ПОРОШОК CaCO_3 ДЛЯ ІМІТАЦІЇ ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ ПРОЦЕСІВ ПЛАЗМОВОЇ СЕПАРАЦІЇ ВЯП

С.В. Шарый, В.Б. Юферов, М.О. Швець, В.І. Ткачов, В.О. Ільчова, А.М. Шаповал

Представлено результати експериментальних досліджень плазми, отриманої при электродуговій дії на порошок CaCO_3 з натуральним та очищеним хімічними складами. Показано, що наявність домішок в натуральному CaCO_3 призводить до збільшення розрядних струмів, необхідних для отримання іонів Ca^+ більш ніж удвічі. Аналіз спектра випромінювання плазми для CaCO_3 без домішок показав, що при збільшенні потужності розряду зростає ступінь іонізації плазми зі збільшенням концентрації однозарядних іонів кальцію за рахунок дисоціації та іонізації молекулярних компонентів.

SPECTRAL STUDIES OF PLASMA AT ELECTRIC ARC INFLUENCE ON CaCO_3 POWDER TO SIMULATE PHYSICAL-CHEMICAL PROCESSES OF SPENT FUEL PLASMA SEPARATION

S.V. Shariy, V.B. Yuferov, M.O. Shvets, V.I. Tkachov, V.O. Ilichova, A.N. Shapoval

The results of experimental studies of plasma formed at electric arc impact on a powder of CaCO_3 (natural and purified oxides). It was shown that the presence of impurities in natural CaCO_3 leads to an increase in the discharge currents necessary to produce Ca^+ ions more than twice. The analysis of the plasma emission spectrum for purified CaCO_3 showed at discharge power increasing the increase of plasma ionization degree and increase in the concentration of single-charged calcium ions due to the dissociation and ionization of molecular components.