## \_\_\_\_\_ ДИАГНОСТИКА ПЛАЗМЫ =

УДК 537.525.5

# ИССЛЕДОВАНИЕ ЗАРЯДОВОГО СОСТАВА ПЛАЗМЫ ДИФФУЗНОЙ ВАКУУМНОЙ ДУГИ НА ГОРЯЧЕМ КАТОДЕ ВРЕМЯПРОЛЕТНЫМ МЕТОДОМ

© 2020 г. А. Д. Мельников<sup>*a*, *b*, \*, Р. А. Усманов<sup>*a*</sup>, Р. Х. Амиров<sup>*a*</sup>, Н. Н. Антонов<sup>*a*</sup>, А. В. Гавриков<sup>*a*, *b*</sup>, Г. Д. Лизякин<sup>*a*</sup>, В. П. Полищук<sup>*a*</sup>, В. П. Смирнов<sup>*a*</sup></sup>

<sup>а</sup> Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия <sup>b</sup> Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет), Долгопрудный, Россия \*e-mail:Antonmelnikoff@yandex.ru Поступила в редакцию 11.11.2019 г. После доработки 28.01.2020 г. Принята к публикации 28.01.2020 г.

Исследование вакуумного дугового разряда с диффузной катодной привязкой интересно в связи с развивающимися методами плазменной переработки отработавшего ядерного топлива. Данный тип разряда может обеспечить высокую степень ионизации паров катодного материала при отсутствии капель и многократных ионов. Данная работа посвящена исследованию зарядового состава плазмы дугового разряда на расходуемом горячем катоде из гадолиния путем анализа оптического и масс-спектров ионов. Зарядовый состав плазмы был определен при токе разряда 50 А, напряжении дуги от 4 до 14 В и температуре катода от 1.9 до 1.95 кК. Полученные данные, в совокупности с данными, зафиксированными при помощи метода конденсационного зонда, показали, что при напряжении дуги 5–6 В генерируется плазма со степенью ионизации, близкой к 100%, в которой содержится более 95% однократных ионов среди всех зарядовых состояний.

*Ключевые слова:* диффузная вакуумная дуга, ионный состав, масс-спектроскопия, времяпролетный масс-анализатор, источники плазмы, плазменная сепарация

DOI: 10.31857/S0367292120060050

#### 1. ВВЕДЕНИЕ

Метод плазменной переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) разрабатывается для решения проблемы утилизации ОЯТ и замыкания ядерного топливного цикла [1]. Данный метод подразумевает преобразование ОЯТ в состояние плазменного потока, инжектируя который в специальную конфигурацию электромагнитного поля, возможно, добиться разделения актиноидов и продуктов ядерного распада [2-6]. Для полного выделения актиноидов вешество в плазменном потоке должно быть полностью ионизировано. Кроме того, ионы должны иметь одинаковый заряд. Таким образом, возникают требования, предъявляемые к источнику плазмы: степень ионизации близкая к 100% и превалирующее содержание однократных ионов в составе, а также производительность, в перспективе представляющая интерес для промышленности (~10 т/год [7]). Подобным требованиям может удовлетворить вакуумный дуговой разряд с диффузной катодной привязкой (ДКП) [8–10]. Он характеризуется напряжением до нескольких десятков вольт и плотностью тока  $10-100 \text{ A/cm}^2$ , а также режимами с отсутствием капель катодного материала [11, 12].

С целью использования вакуумного дугового разряда с ДКП для метода плазменной переработки ОЯТ, был начат цикл исследований свойств плазмы, генерируемой источником [13– 15]. В настоящей работе в качестве рабочего вещества, моделирующего уран, был выбран гадолиний, так как величины первых трех потенциалов ионизации U и Gd близки [16], а работа с ним из-за отсутствия радиоактивности не требует выполнения специальных регламентов.

Основной задачей данной работы являлось экспериментальное изучение зависимости зарядового состава плазмы вакуумной дуги с ДКП на катоде из гадолиния от напряжения горения разряда, определение процентного соотношения концентраций ионных компонент и параметров плазмы, позволяющих обеспечить близкую к 100% ионизацию плазменного потока при средней кратности ионизации близкой к 1. Заметим, что исследование свойств и особенностей вакуумного дугового разряда актуально не только с точки зрения разработки метода плазменной переработки ОЯТ, но и в связи с нерешенностью таких фундаментальных вопросов как механизм ускорения ионов [17, 18], и роль факторов обеспечивающих тепловой баланс на катоде [19–21].

#### 2. МЕТОДЫ

Экспериментальная установка представляла собой цилиндрическую вакуумную камеру диаметром 300 мм и высотой 600 мм. Разряд постоянного тока генерировался в катод-анодном промежутке длиной 30 мм. Материалом расходуемого катода был гадолиний массой 3-6 г, который находился в молибденовом тигле цилиндрической формы с внешним диаметром 24 мм и высотой 15 мм. Тигель имел выходное отверстие диаметром 14 мм (см. рис. 1). Нагрев тигля производился при помощи электронно-лучевого подогревателя (ЭЛП) мощностью до 1.5 кВт, расположенного под ним. Варьирование мощности ЭЛП и, соответственно, температуры тигля при фиксированном токе дуги приводило к изменению напряжения разряда [13]. Контроль температуры тигля осуществлялся при помощи яркостного пирометра, настроенного на его боковую поверхность. Анод представлял собой пластину из молибдена толщиной 0.5 мм без дополнительного охлаждения. В центре анода находилось отверстие диаметром 14 мм, через которое плазма проходила в заанодное пространство. Ток разряда задавался установкой балластного водоохлаждаемого реостата. В качестве основных параметров, характеризующих дуговой режим, выбраны ток, напряжение и мощность ЭЛП.

Исследование зарядового состава плазмы осуществлялось времяпролетным методом - регистрировался масс-спектр ионов плазмы, прошедшей в заанодное пространство. Также дополнительно регистрировался эмиссионный спектр плазмы. Для этого использовался спектрометр с разрешающей способностью 0.3 нм в спектральном диапазоне 200-600 нм. Сбор излучения производился из области вблизи выходного отверстия тигля. Для анализа спектра излучения плазмы выбирались спектральные линии, которые хорошо разрешались спектрометром при наличии в спектре линий атомов и первых трех ионов гадолиния. Так для однократных ионов гадолиния были выбраны следующие линии: 305.5. 350.5, 391.6, 411.1, 517.6, 573.4 нм, для двукратных: 252.0, 497.7, 555.3, 565.9, 578.7 нм, для трехкратных: 244.1 (дуплет), 235.3, 242, 207.1 нм. Данные были взяты из базы NIST [22]. В ходе обработки полученных данных рассматривались нормированные на максимум интенсивности спектральных линий. На рис. 2 представлен пример зареги-



Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

стрированного спектра плазмы в режиме с напряжением дуги 6.8 В.

Входное отверстие во времяпролетный массанализатор располагалось на высоте 25 см над анодом. Формирование и ускорение пучка ионов внутри анализатора осуществлялось по схеме, предложенной в [23]. Ускоряющий электрический потенциал составлял 800 В. Ускоренные ионы с отличным отношением заряда к массе из-за разницы в приобретенных скоростях достигали коллектора ионов за различное время. Коллектор представлял собой плоскую металлическую пластину и располагался на расстоянии 55 см от входного отверстия. Детектирование потока частиц, приходящих на коллектор, осуществлялось измерением напряжения на нагрузочном резисторе. Регистрация сигнала с нагрузочного резистора осуществлялась осциллографом с полосой пропускания 100 МГц, что позволяло исследовать без искажения сигналы массовых пиков длительностью до 10 нс. Фокусировка пучка проводилась при помощи электрооптической линзы Энзеля [24]. Для калибровки интенсивности сигнала вре-



**Рис. 2.** Пример зарегистрированного эмиссионного спектра плазмы в режиме с напряжением дуги 6.8 В. На спектре указаны линии однократных ионов гадолиния за которыми производилось наблюдение, а также спектральные области преобладания линий ионов различной кратности.

мяпролетного анализатора проводилось измерение концентрации ионов, методом одиночного зонда [25] при этом использовался цилиндрический зонд, рабочая головка которого представляла собой молибденовую проволоку длиной 15 мм и диаметром 0.6 мм, расположенную вблизи входного отверстия во времяпролетный анализатор.

### 3. ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЗАРЯДОВОГО СОСТАВА

Зарядовый состав плазмы дуги с ДКП исследовался в зависимости от величины напряжения разряда. Увеличение напряжения вызывало повышение равновесной температуры электронов [13], что, в свою очередь, приводило к изменению степени ионизации плазмы и ее зарядового состава. Ток дуги поддерживался постоянным и составлял 50 А. Температура тигля изменялась от 1900 до 1950 К, напряжение разряда при этом уменьшалось от 14 до 4 В. Иначе говоря изменение мощности ЭЛП позволяло варьировать напряжение дуги и задавать режим работы источника по напряжению.

В ходе экспериментов на коллекторе времяпролетного масс-анализатора регистрировался сигнал ионов в виде импульсов напряжения, каждому режиму разряда по напряжению соответствовала своя осциллограмма сигнала. Пример типичной осциллограммы приведен на рис. 3. На основании полученных данных определялись концентрации ионов. Для этого устанавливалось соответствие массовых пиков конкретным кратностям ионов гадолиния. Отношение площадей массовых пиков дает информацию об относительной концентрации ионов различной кратности. Для определения абсолютных значений концентрации осуществлялась калибровка на основе измерений концентрации однократных ионов методом одиночного зонда, причем экспериментальные режимы, использованные для этого заведомо относились к случаю, когда в разряде доля ионов кратности два и выше была много меньше доли однократных ионов. Данные калибровочных измерений позволили найти коэффициент перевода площади массового пика в концентрацию ионов в предположении, что коэффициент чувствительности масс-анализатора прямо пропорционален кратности и слабо зависит от их концентрации.

Зависимость концентраций ионов гадолиния от напряжения дуги представлена на рис. 4а. Результаты получены путем усреднения по нескольким сериям измерений. Порог чувствительности масс-анализатора составлял порядка  $n_{\mu} = 10^8 \text{ см}^{-3}$ .

При меньших концентрациях возможно только проведение грубых оценок. К примеру, при напряжении разряда  $U_{\rm g} = 13.4$  В наблюдался сигнал однократных ионов, но их концентрация была примерно на два порядка меньше концентрации двукратных и трехкратных ионов в этом режиме ( $n_{\rm Gd+} \sim 10^7$  см<sup>-3</sup>).

Отметим, что увеличение напряжения на разрядном промежутке производилось путем снижения температуры тигля (мощности ЭЛП), а, следовательно, и концентрации паров плазмооб-



**Рис. 3.** Пример осциллограммы сигнала с коллектора времяпролетного масс-анализатора ( $U_n = 13.4$  B).

разующей среды. Считая, что суммарная концентрация атомов и ионов гадолиния вблизи входного отверстия времяпролетного масс-анализатора при уменьшении температуры изменяется пропорционально концентрации насыщенных паров гадолиния в тигле, можно оценить, как меняется степень ионизации плазмы при варьировании напряжения на разрядном промежутке. В режиме с напряжением разряда  $U_{\rm A}$  = 4 В температура тигля была 1950 K, а при напряжении 6 В – 1920 К. При таком изменении температуры концентрация насыщенных паров падает примерно в 1.5 раза [16], а измеренная масс-анализатором концентрация однократных ионов уменьшилась всего в 1.15 раза. Из чего можно сделать следующий вывод – одновременно с уменьшением концентрации плазмообразующей среды. степень ионизации

Таблица 1. Ионный состав плазмы при различных напряжениях дугового разряда

Напряжение разряда, В	$\mathrm{Gd}^+$	$\mathrm{Gd}^{++}$	$\mathrm{Gd}^{+++}$
4-6	100%	0%	0%
7	85%	15%	0%
8	50%	50%	0%
9	0%	95%	5%
10	0%	80%	20%
11	0%	75%	25%
12	0%	70%	30%
13	0%	65%	35%
14	0%	60%	40%
14	0%	00%	40%

возрастала примерно в 1.3 раза. Это хорошо согласуется с результатами измерения среднего заряда частиц плазмы методом конденсационного зонда из работы [13]. Средним зарядом считалось отношение суммарного заряда положительно заряженных и нейтральных частиц гадолиния в потоке плазмы, вышедшей в заанодное пространство, к числу этих частиц и деленное на заряд протона. При напряжении 6–6.5 В средний заряд близок к 1 [13]. Как следует из масс-спектрометрических и оптических измерений в этом режиме доля двукратных ионов мала, следовательно, степень ионизации плазмы приближается к 100% (>90%).

В таблице 1 представлен ионный состав плазмы дуги с ДКП при различных напряжениях разряда.

Расстояние между масс-анализатором и дуговым разрядом составляет 25 см. Проведем оценку доли рекомбинировавших на данном расстоянии частиц. Примем концентрацию плазмы у анода  $n_0 = n_i = n_e = 10^{12} \text{ см}^{-3}$  и будем считать, что она изменяется только за счет рекомбинации (т.е. не происходит ухода частиц из рассматриваемого объема). При такой величине концентрации основным механизмом рекомбинации в системе будет радиационная рекомбинация. Оценочный коэффициент радиационной рекомбинации α равен 10<sup>-12</sup>-10<sup>-13</sup> см<sup>3</sup>/с [26]. Энергия ионов в заанодном пространстве примерно 10 эВ, что при заданном расстоянии дает время пролета ионов до масс-анализатора  $\tau = 10^{-4}$  с. Можно оценить долю рекомбинировавших в течении этого времени частиц, выписав уравнение для концентрации

ионов:  $\frac{dn_i}{dt} = \alpha \cdot n_e \cdot n_i = \alpha \cdot n_i^2$ . Доля рекомбинировавших частиц:  $\frac{\Delta n_i}{n_i^*} = \frac{n_0^2 \cdot \alpha \cdot \tau}{n_i^*(1 + \alpha \cdot \tau \cdot n_0)} = \frac{n_0^2 \cdot \alpha \cdot \tau}{n_i^*} =$ 

 $= 10^{-3}$  ( $n_i^*$  — концентрация ионов у входа в массанализатор измеренная в эксперименте, величи-

на  $\alpha \cdot \tau \cdot n_0$  много меньше единицы). Следовательно, зарядовый состав плазмы у входа во время-пролетный масс-анализатор, соответствует зарядовому составу плазмы в источнике.

На рис. 4б представлены зависимости нормированных интенсивностей однократных и двукратных ионов, от напряжения разряда  $I_{\text{норм}}(U_{\text{д}})$ . Заметим, что эти графики представляют собой результат усреднения по нескольким спектральным линиям для каждой из кратностей ионов. На основании данных об интенсивностях линий трехкратных ионов можно сделать качественный вывод об их присутствии в режимах горения дуги с напряжением разряда превышающем 9 В.

Зависимости  $I_{\text{норм}}(U_{\text{д}})$  и  $n_{\text{u}}(U_{\text{d}})$  в диапазоне от 5 до 14 В ведут себя сходным образом — с ростом



**Рис. 4.** а) — Концентрации ионов гадолиния в различных режимах горения дуги с ДКП; б) — нормированная на максимум усредненная интенсивность спектральных линий.

напряжения уменьшается и концентрация и интенсивности линий (см. рис. 4). В режимах же с напряжением разряда ниже 5 В ситуация другая: при увеличении напряжения концентрация ионов слабо убывает, а интенсивность спектральных линий возрастает практически в два раза. Подобное расхождение может быть объяснено ростом температуры электронов при повышении напряжения дуги (при увеличении  $U_{\rm д}$  от 4 до 10 В рост  $T_e$  с 1 до 3 эВ), а также поглощением спектральных линий плазмой. Действительно, в условиях эксперимента понижение напряжения на разрядном промежутке при постоянном токе дуги достигалось увеличением температуры тигля, т.е. повышением концентрации плазмообразующей среды. Другими словами, чем ниже напряжение дуги, тем больше концентрация плазмы и больше поглощение излучения.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обобщая полученные результаты исследования плазмы дугового разряда с ДКП на гадолиниевом катоде можно отметить следующее: при напряжениях разряда вплоть до 6 В в плазме присутствуют преимущественно однократные ионы, при напряжении около 9 В – в основном двукратные (более 90%). При изменении напряжения разряда от 4 до 6 В, степень ионизации увеличилась приблизительно в 1.3 раза. Следует отметить,

что концентрация плазмообразующей среды (паров гадолиния) убывает с ростом напряжения дуги при поддержании тока дуги неизменным. В связи с этим, несмотря на увеличение степени ионизации с ростом напряжения, абсолютная величина концентрации однократных ионов достигает максимального значения вблизи  $U_{\pi} = 4$  В. Важным результатом настоящей работы является обнаруженный экспериментальный режим, в котором плазма дугового разряда с подогреваемым катодом обладает степенью ионизации близкой к 100% и содержит преимущественно однократные ионы. Параметры режима следующие:  $U_{\pi} = 5 - 6$  В, температура гадолиниевого катода -1920-1940 К (ток дуги 50 А). Изложенное делает вакуумный дуговой разряд перспективным кандидатом с точки зрения использования в качестве источника плазмы для реализации метода плазменной сепарации веществ и разработки технологии плазменной переработки ОЯТ.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Vorona N.A., Gavrikov A.V., Samokhin A.A., Smirnov V.P., Khomyakov Y.S. // Phys. At. Nuclei. 2015. V. 78. P. 1624.
- Cluggish B.P., Anderegg F.A., Freeman R.L., Gilleland J., Hilsabeck T.J., Isler R.C., Lee W.D., Litvak A.A., Miller R.L., Ohkawa T., Putvinski S., Umstadter K.R., Winslow D.L. // Phys. Plasmas. 2005. V. 12. P. 057101.
- 3. Коробкин Ю.В., Лебедев Н.В., Паперный В.Л. // Письма ЖТФ. 2012. Т. 38. С. 254.
- Юферов В.Б., Егоров А.М., Ильичева В.О., Шарый С.В., Живанков К.И. // ВАНТ: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение. 2013. Вып. 2. С. 148.
- 5. Долголенко Д.А., Муромкин Ю.А. // УФН. 2017. Т. 187. С. 1071–1096.
- Zweben S.J., Gueroult R., Fisch N.J. // Phys. Plasmas. 2018. V. 25. P. 90901.
- Смирнов В.П., Самохин А.А., Ворона Н.А., Гавриков А.В. // Физика плазмы. 2013. Т. 39. С. 523.
- Васин А.И., Дороднов А.М., Петросов В.А. // Письма ЖТФ. 1979. Т. 5. Вып. 24. С. 1499.
- Veerasamy V., Amaratunga G., Weiler M., Park J., Milne W. // Surf. Coat. Technol. 1994. V. 68/69. P. 301.

- 10. Kajioka H // J. Vac. Sci. Technol. 1997. V. A15. P. 2728.
- 11. Дороднов А.И., Петросов В.А. // ЖТФ. Т. 51. С. 504. 1981.
- 12. Boxman R.L., Sanders D.M., Martin P.J. Handbook of Vacuum Arc Science and Technology: Fundamentals and Applications. New Jersey.: Noyes Publications. 1995.
- Amirov R.Kh., Vorona N.A., Gavrikov A.V., Lizyakin G.D., Polishchuk V.P., Samoilov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A, and Yartsev I.M.//Plasma Phys. Rep. 2015. V. 41. P. 808.
- Amirov R.Kh., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchook V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Vorona N.A., Yartsev I.M. // IEEE Trans. Plasma Sci. 2017. V. 45. P. 140–147.
- Usmanov R.A., Amirov R.Kh., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchook V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Vorona N.A., Yartsev I.M. // Phys. Plasmas. 2018. V. 25. P. 063524.
- 16. *Grigoriev I.S., Meilikhov E.Z.* Handbook of Physical Quantities. Boca Raton.: CRC. 1997.
- Anders A. Cathodic Arcs: From Fractal Spots to Energetic Condensation.New York.: Springer Science + Business Media. 2008.
- Amirov R.Kh., Vorona N.A., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchook V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Yartsev I.M. // J. Phys.: Conf. Ser. 2017. V. 830. P. 12059.
- Bolotov A., Kozyrev A., Korolev Y. // IEEE Trans. Plasma Sci. 1995. V. 23. P. 884.
- 20. *Benilov M.S., Benilova L.G.* // IEEE Trans. Plasma Sci. 2015. V. 43. P. 2247.
- 21. Polishchuk V.P. // High Temp. 2005. V. 43. P. 8.
- 22. *Kramida A., Ralchenko Y., Reader J.* and NIST ASD Team. 2015. (online)
- 23. *Wiley W.C., McLaren I.H.* // Rev. Sci. Instrum. 1955. V. 26. P. 1150.
- 24. *Klemperer O., Barnett M.E.* Electron Optics. Cambridge: Cambridge University Press, 2011.
- 25. *Lieberman M.A., Lichtenberg A.J.* Principles of Plasma Discharges and Materials Processing. New Jersey: John Wiley & Sons. 2005.
- Биберман Л.М., Воробьев В.С., Якубов И.Т. Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы. М.: Наука. 1982.