

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Объединенный институт высоких температур Российской академии наук

На правах рукописи

УДК 537.525.5

Мельников Антон Дмитриевич

**Исследование вакуумного дугового разряда с
подогреваемым катодом на оксид-содержащих материалах
и многокомпонентных смесях для задачи плазменной
сепарации ОЯТ**

1.3.9 – Физика плазмы

ДИССЕРТАЦИЯ

на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

к.ф.-м.н.

Усманов Равиль Анатольевич

Москва — 2023

Оглавление

Введение	4
Глава 1 Вакуумный дуговой разряд как источник плазмы	10
1.1 Плазменные технологии	10
1.2 Метод плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива.....	14
1.3 Вакуумный дуговой разряд	16
1.4 Диффузная вакуумная дуга с термоэмиссионными катодами	20
1.5 Диффузный вакуумный дуговой разряд с не термоэмиссионными катодами	27
1.6 Диффузный вакуумный дуговой разряд с керамическим катодом	35
1.7 Вакуумная дуга в магнитном поле.....	37
1.8. Выводы к первой главе	40
Глава 2 Времяпролетный масс-спектрометр для исследования ионного состава непрерывного потока плазмы тяжелых металлов и их оксидов	41
2.1. Факторы, определяющие разрешающую способность времяпролетного масс-спектрометра	41
2.2. Времяпролетная масс-спектрометрия плазмы.....	44
2.3. Времяпролетный масс-спектрометр для диагностики ионного состава непрерывного потока плазмы	46
2.4. Апробация времяпролетного МС в плазме диффузного вакуумного-дугового разряда	52
2.5. Выводы ко второй главе	55
Глава 3 Исследование параметров генерируемой плазмы на основе диффузной вакуумной дуги с монокомпонентным катодом из оксид-содержащего материала	57
3.1. Экспериментальная установка и методы диагностики	57
3.2. Ионный состав плазмы диффузной вакуумной дуги с катодом из гадолиния.....	59
3.3. Временная эволюция параметров диффузной вакуумной дуги с катодом из CeO_2 и режимы вакуумной дуги	63
3.4. Влияние температуры катода на ионный состав плазмы	66
3.5. Зависимость ионного состава плазмы от тока разряда	68
3.6. Особенности горения вакуумной дуги с керамическим катодом.....	71

3.7. Отрицательные ионы в составе плазмы	73
3.8. Выводы к третьей главе	78
Глава 4 Исследование влияния теплофизических параметров материалов катода на свойства диффузной вакуумной дуги с многокомпонентным катодом	80
4.1. Источник многокомпонентной плазмы для задачи плазменной сепарации ОЯТ	80
4.2. Диффузная вакуумная дуга с катодом из CeO_2 и Cr	83
4.3. Диффузная вакуумная дуга с катодом из $\text{TiO}_2 + \text{Cr}$	91
4.4. Условия реализации диффузной формы вакуумной дуги	97
4.5. Выводы к четвертой главе	99
Глава 5 Реализация диффузной формы вакуумного дугового разряда в магнитном поле и исследование его влияния на параметры генерируемого потока плазмы	101
5.1. Вакуумная дуга во внешнем магнитном поле с арочной конфигурацией	101
5.2. Экспериментальный стенд для исследования вакуумной дуги с подогреваемым катодом во внешнем магнитном поле с аксиальной конфигурацией	114
5.3. Результаты экспериментов по инициации вакуумного дугового разряда с катодом из гадолиния в аксиальном магнитном поле	123
5.4. Выводы к пятой главе	128
Заключение	129
Список литературы	131

Введение

Диссертация посвящена экспериментальному исследованию вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом. Источник плазмы на его основе рассматривается как способ конвертации в плазменное состояние металлических, оксидных и смесевых материалов для задачи плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива (ОЯТ). Рассматриваются вопросы касающиеся условий реализации диффузного типа разряда, временной эволюции параметров генерируемой плазмы, роли теплофизических свойств материала катода и влияния внешнего магнитного поля на источник плазмы, а также ионного состава плазмы и других ее параметров в зависимости от режима разряда (тока, напряжения и температуры катода).

Актуальность темы исследования

Актуальность представляемой квалификационной работы связана с тем, что работа относится к циклу исследований, направленному на развитие метода плазменной переработки ОЯТ. Актуальность проблемы переработки нарабатываемого ОЯТ и его рециркуляции подтверждается нацеленностью атомной энергетики на осуществление замкнутого топливного цикла, возрастающей экологической нагрузкой при захоронении ОЯТ и недостаточностью существующих темпов обращения с ОЯТ, что совокупно следует из докладов международных организаций относящихся к ядерной энергетике. Метод плазменной сепарации ОЯТ может стать альтернативой или дополнением к уже существующим и разрабатываемым методам переработки. Плазменный метод позволяет избежать появления значительного объема радиоактивных отходов, характерных для существующих методов, одновременно потенциально обеспечивая требуемую для промышленного применения производительность. С другой стороны, плазменный метод переработки может быть отнесен к высокотехнологичным, в виду сложности реализации и комплексности задачи, по этой причине неизбежен цикл исследований, подтверждающий целесообразность воплощения метода в индустриальном масштабе. Перевод ОЯТ в состояние низкотемпературной плазмы является одним из этапов предлагаемого метода. Источник плазмы, осуществляющий это может быть создан на основе диффузного вакуумного дугового разряда, так как в нем возможно удовлетворить требованиям метода: высокая степень ионизации выходного потока, однородность зарядового состава, производительность конвертации на уровне 100 г/ч. Диффузный тип вакуумного дугового разряда позволяет избежать появления капельной фракции эродирующего катода в генерируемом потоке, а возможность варьировать мощность подогрева катода позволяет контролировать ряд параметров генерируемой плазмы (энергию ионов, зарядовый состав, стабильность горения). Апробация

такого источника требует предварительного цикла исследований по конвертации материалов моделирующих ОЯТ в плазменное состояние, чему и посвящена данная работа.

С другой стороны, рассматривая историю исследований лабораторной плазмы можно заметить, что многие успехи ассоциированы с созданием новых методов генерации, позволявших создавать плазменную среду с новыми параметрами, определяющимися прикладными задачами будь то биологическое воздействие на живые ткани, генерация пучков многозарядных ионов или создание плазменных двигателей и др. В контексте каждой прикладной задачи возникают и определенные инженерно-технические требования, реализация которых привела к имеющему сегодня место многообразию источников плазмы. Одним из методов генерации плазмы, позволяющим достичь новых характеристик плазменных систем, является вакуумный дуговой (ВЧ) разряд с горячим катодом, который может быть основой для создания производительного источника плазмы, и благодаря внешнему подогреву катода, может быть использован для перевода в плазменное состояние как металлов, так и оксидов и их смесей. Помимо этого, полученные в работе данные могут быть востребованы при построении моделей привязки тока на катоде, т.к. в литературе имеет место недостаток данных о характеристиках катодных пятен на поверхностях неметаллических катодов.

Цели и задачи диссертационной работы

Главной целью работы являлось экспериментальное исследование вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом для определения целесообразности его применения при создании источника плазмы сепарируемых веществ в рамках задачи плазменной сепарации ОЯТ. Последнее определяется возможностью реализации и длительного поддержания режимов разряда, в которых генерируется поток плазмы с высокой степенью ионизации, однородным зарядовым составом при отсутствии капельной фракции материала катода. Кроме того, источник плазмы должен осуществлять конвертацию в плазменное состояние как отдельных веществ (металлов или оксидов), так и их смесей, моделирующих ОЯТ.

Для достижения сформулированной цели были поставлены следующие задачи:

- Провести исследование параметров генерируемой плазмы и источника плазмы на основе вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом из материалов моделирующих ОЯТ, а именно ионного состава плазмы, температуры электронов, среднего заряда плазмы, напряжения разряда, стационарности горения в зависимости от тока разряда, температуры катода и времени эксперимента.
- Исследовать возможность реализации диффузного дугового разряда с многокомпонентным катодом, выделить роль состава катода и определить

принципиальную реализуемость режимов разряда, удовлетворяющих требованиям технологии плазменной переработки ОЯТ.

- Адаптировать метод времяпролетной масс-спектрометрии и создать масс-анализатор с разрешающей способностью достаточной для исследования непрерывного потока плазмы из металлов и их оксидов, т.е. разрешающего массовые пики отстоящие на 16 а.е.м..
- Создать экспериментальный стенд для исследования вакуумного дугового разряда во внешнем аксиальном магнитном поле включающий: вакуумную систему, систему генерации магнитного поля, диагностический комплекс для измерения параметров плазмы, источник плазмы.

Научная новизна

Научная новизна данной диссертационной работы, посвященной исследованию вакуумной дуги с горячим катодом, обосновывается рядом факторов:

Были *впервые* проведены экспериментальные исследования временной эволюции диффузного вакуумного разряда с расходуемым катодом из оксидного материала, а именно было установлено как меняется во времени напряжение разряда, зарядовый состав плазмы, концентрация ионов, сделаны выводы о возможности поддерживать стационарный режим горения дуги.

Получены *новые* экспериментальные данные о зависимости ионного состава плазмы диффузной вакуумной дуги для нескольких материалов катода (CeO_2 , CeO_2+Cr , TiO_2+Cr) от параметров разряда. В случае катода из диоксида церия измерены зависимости ионного состава от силы тока разряда, и показано, что температура катода слабо влияет на него в стационарных режимах разряда.

Были получены *новые* данные об условиях реализации диффузного типа вакуумной дуги с подогреваемым катодом. Во-первых, с катодом из оксид-содержащего материала, а именно диоксида церия. Во-вторых, с несколькими смесевыми катодами, состоящими из металла и оксида (CeO_2+Cr , TiO_2+Cr). Смеси отличались между собой атом-электронным соотношением. *Впервые* описаны контролируемые переходы между диффузной и контрагированной дугой.

Получены *новые* экспериментальные данные о параметрах вакуумного дугового разряда на смесевых катодах (ВАХ, баланс энергии на катоде, стационарность горения). Измерены средний заряд, состав и концентрация плазмы, температура электронов.

Была предложена *новая* схема времяпролетного масс-спектрометра, адаптирующая традиционные подходы, для исследования непрерывного потока плазмы тяжелых металлов и обеспечивающая достаточное для исследования металлов и их оксидов разрешение.

Предложена **новая** конфигурация источника плазмы на основе вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом. Осуществлена инициация диффузной формы вакуумного дугового разряда в аксиальном магнитном поле с катодом из гадолиния. Проведено исследование влияния магнитных полей в арочной и аксиальной конфигурации на параметры разряда и тип катодной привязки.

Теоретическая и практическая значимость

Результаты экспериментальных исследований, представленные в данной квалификационной работе, могут быть использованы для дальнейшего развития моделей физических процессов в катодном слое вакуумных дуг, что важно т.к., к примеру, сейчас не существует непротиворечивой модели катодного пятна. В частности, в работе представлены уникальные данные демонстрирующие особенности вакуумных дуг с катодами комплексного состава включающие оксидные материалы. Была предложена новая схема времяпролетного масс-спектрометра, адаптирующая традиционные подходы, для исследования непрерывного потока плазмы тяжелых металлов и обеспечивающая достаточное для исследования металлов и их оксидов разрешение. Полученные результаты позволяют сделать выводы о целесообразности создания источников плазмы на основе диффузной вакуумной дуги для технологии плазменной переработки ОЯТ, методов создания функциональных покрытий или других технологий подразумевающих высокопроизводительный перевод оксидов в состояние потока низкотемпературной плазмы.

Положения, выносимые на защиту

1. Метод времяпролетной масс-спектропии направленного, непрерывного потока плазмы диффузной вакуумной дуги, позволяющий проводить измерения относительного и абсолютного содержания генерируемых атомарных и молекулярных ионов продуктов эрозии катода, и созданный на основе данного метода масс-спектрометр.
2. Температурные условия для катода из диоксида церия, определяющие переход от диффузного типа привязки тока на катоде вакуумного дугового разряда к контрагированному, и для формирования обнаруженных медленно движущихся катодных пятен.
3. Слабое влияние температуры катода на ионный состав плазмы диффузной вакуумной дуги с катодом из CeO_2 при стационарном горении разряда, в котором доля ионов тугоплавкого материала тигля достигает 40% и доля молекулярных ионов снижается с ростом тока.
4. Впервые реализован и исследован диффузный вакуумный дуговой разряд с мультикомпонентным расходуемым катодом ($\text{CeO}_2\text{-Cr}$) и показано, что массовое

соотношение термоэмиссионного оксида и не термоэмиссионного металла определяет характер зависимости напряжения разряда от температуры катода и параметры плазмы.

5. Создан источник плазмы вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом (ток разряда 0-300 А, напряжение 0-60 В, мощность подогрева катода до 2 кВт) для генерации плазмы тяжелых металлов и оксидов, моделирующих ОЯТ.

Степень достоверности и апробация результатов

Экспериментальные данные были получены с использованием общепринятых методов диагностики и современного измерительного оборудования, обеспечивающих высокую надежность и необходимую точность измерений. Достоверность результатов анализа обеспечивается проверкой работы всех систем на ранее изученных катодах, взаимной согласованностью экспериментальных данных, получаемых при помощи различных диагностических методик, их воспроизводимостью, а также согласованностью с имеющимися данными других авторов.

Основные результаты диссертационной работы докладывались на следующих конференциях: 60-65 Всероссийские научные конференции МФТИ (Долгопрудный, 2017-2022), Международная конференция Equations of State for Matter (Эльбрус 2018), международная конференция ЛаПлаз 2018 (Москва, 2018), Научно-координационная сессия РАН "Исследования неидеальной плазмы" (Москва, 2019), XLIX Международная звенигородская конференция по физике плазмы и управляемому термоядерному синтезу (Звенигород, 2022), международная конференция Plasma Tech (Барселона, 2022), 8th International Congress on Energy Fluxes and Radiation Effects EFRE-2022 (Томск, 2022), Всероссийская (с международным участием) конференция Физика Низкотемпературной Плазмы ФНТП-2023 (Казань, 2023)

Результаты по отдельным главам диссертационной работы были удостоены премий в конкурсах научных работ: конкурс научных работ студентов и молодых ученых ОИВТ РАН 2019 года, категория - студенты, первая премия; конкурс научных работ студентов и молодых ученых ОИВТ РАН 2020 года, категория – аспиранты, вторая премия.

Публикации

Материалы диссертации опубликованы в 28 печатных работах, среди которых 7 — это публикации в рецензируемых журналах, входящих в перечень ВАК [1-7], и 21 работа в сборниках трудов конференций и тезисов докладов.

Личный вклад автора

Основные выносимые на защиту положения работы, и содержание диссертации отражают персональный вклад автора в опубликованные работы. Подготовка полученных результатов к

публикациям проводилась совместно с соавторами, причем вклад диссертанта был определяющим. Все представленные в квалификационной работе результаты получены автором лично.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, 5-ти глав, заключения и списка использовавшейся литературы. Общий объем диссертации 140 страниц, из них 130 страниц текста, включая 82 рисунка и 10 таблиц. Библиография включает 143 наименования.

Благодарности

Автор работы выражает глубокую признательность своему научному руководителю Усманову Р.А. за неоценимый переданный опыт, внимание и терпеливость как наставника и высокие стандарты профессионализма в исследовательской деятельности. Автор также благодарен Гаврикову А.В. за важнейшее участие в постановке научных задач и продуктивную атмосферу товарищества в коллективе. Кроме того, автор искренне признателен Полищуку. В.П. и Антонову Н.Н. за многочисленные обсуждения, помощь в проведении экспериментов и анализе результатов, и, конечно, всему коллективу лаборатории 2.1 ОИВТ РАН за помощи и поддержку. Большую благодарность автор высказывает Иосилевскому И.Л. за раскрытие важности рассмотрения особенностей фазовых переходов. Отдельную благодарность автор высказывает Седину А.А. за конструкторское сопровождение работы, Быкову Ю.А. за консультации по схемотехнике, а также Тугушеву В.И. и Лукину О.Ю. за помощь в создании экспериментальных узлов.

Глава 1

Вакуумный дуговой разряд как источник плазмы

В данной главе последовательно описывается актуальное состояние исследований вакуумного дугового разряда. В начале главы (раздел 1.1) кратко проводится анализ истории науки в области физики плазмы с целью ответа на вопрос о целесообразности исследований спустя два века после их начала. Данная часть может восприниматься менее формально, тем не менее она кажется важной для формирования целостного понимания роли данной работы, которое необходимо квалифицированному специалисту в любой области. В разделе 1.2 приводится описание метода плазменной сепарации, в рамках развития которого выполнена данная диссертационная работа. Раздел 1.3 посвящен краткому описанию вакуумного дугового разряда. Далее следуют разделы 1.4, 1.5 и 1.6 в которых представлен обзор литературных источников, диффузного вакуумного дугового разряда. Данные разделы отражают современное состояние науки касательно объекта исследования настоящей работы. Заключительный раздел первой главы 1.7 содержит обзор работ, в которых анализировалось влияние аксиального магнитного поля на ВД разряд.

1.1 Плазменные технологии

Явление ионизации нейтрального газа известно уже не одно столетие, совокупность знаний о нем, накопленных человечеством за это время, составляет отдельный раздел современной науки, называемый физикой плазмы. Согласно словам Арцимовича, физика плазмы схожа с морем, морем большим, но неглубоким. Действительно, большое разнообразие феноменов природы как наблюдаемых человеком, так и созданных искусственно может быть объяснено в рамках относительно небольшого базиса основных идей. Но физика плазмы уже давно вышла за рамки описательной науки и стала наукой прикладной. Идею колеса можно воспринимать сколь угодно простой, область же ее практических воплощений по меньшей мере можно считать обширной.

Ключевым поворотом в развитии любой физической идеи или концепции является ее практическое применение. Роль науки в истории может быть выражена в конкретных технологиях. Отметим несколько индустриальных направлений, в которых были достигнуты значительные успехи благодаря применению плазменных технологий. В микроэлектронике метод плазменного травления играет важную роль в производственном процессе. Как правило для травления применяется высокочастотный разряд (ВЧ). Ранние версии установок носили название плазменный реактор или «reactive-ion-etchers» (RIT) и функционировали при давлении

рабочего газа в несколько сотен мТорр и частоте генерации 13,56 МГц [8]. Далее перешли к системам с более высоким давлением и магнитным полем [9] [10]. Последнее позволило повысить степень ионизации плазмы из-за увеличения времени жизни электронов, а, следовательно, и скорость травления. Следующим шагом стал переход к источникам, функционирующим на нескольких частотах, одна из которых обеспечивает генерацию плазмы (емкостным ВЧ разрядом), а вторая прикладывается к обрабатываемой ВЧ пластинке и позволяет независимо контролировать энергии ионов [11] [12]. Индуктивный ВЧ разряд также используется для создания систем плазменного травления (СПТ), ВЧ антенны при этом находятся вне камеры, а подложка располагается на специальном держателе, который связан с ВЧ генератором по емкостному каналу [9]. Такие СПТ обыкновенно функционируют при давлении 1-10 мТорр и используются для травления алюминия и его оксидов. Существуют СПТ, в которых генерация плазмы основана на электронно-циклотронном резонансе. В таких СПТ ВЧ излучение вводится через диэлектрическое окно в плазмообразующую среду низкого давления, кроме того, создается внешнее магнитное поле. Рождающиеся электроны двигаются по циклическим траекториям, при совпадении частоты этого вращения и частоты внешнего ВЧ излучения имеет место резонанс. Электроны эффективно поглощают энергию ВЧ поля достаточную для ионизации газа и генерации плазмы [9]. В коммерческих вариантах частота как правило равна 2,45 ГГц. Сейчас такие СПТ используются для травления кремния или алюминия. Начиная с 1968 года, когда американским физиком С. М. Ирвингом была предложена идея применения ионного распыления в микроэлектронике, технология плазменного травления была успешно применена для многих материалов, начиная с диоксида кремния, поликристаллического кремния и алюминия и продолжая другими как проводящими, так и изолирующими материалами. Важно подчеркнуть, что прогресс в плазменном травлении был обусловлен последовательным совершенствованием использовавшихся источников плазмы.

В современной астронавтике плазменные двигатели стали важным средством маневрирования. Идея электрического ускорения ракет впервые появляется в 1911 году в работе Константина Эдуардовича Циолковского [13]. Приведем цитату из этой работы: «Возможно, что со временем мы сможем использовать электричество, чтобы сообщать большую скорость частицам, выбрасываемым из ракеты». Практически одновременно с К.Э. Циолковским идея электрического двигателя рассматривается молодым физиком Робертом Хатчингсом Годдардом. В 1917 году Годдард представляет первый в мире электростатический ионный ускоритель [14]. В центр внимания концепцию электрического ускорения вынес Герман Юлиус Оберт, который впервые публично заявил о нем как о заслуживающим серьезной роли в астронавтике [15]. Его концепция электрического двигателя носит существенно качественный характер, основана на экспериментальных наблюдениях «электрического ветра», и имеет больше сходства с

пионерскими работами Годдарда, нежели с современными ускорителями. Первый лабораторный прототип электрического ускорителя был создан в 1929-1933 годах в ленинградской лаборатории газодинамики научной группой под руководством Валентина Петровича Глушко [16].

В СССР в 1955 году выходит работа Алексея Ивановича Морозова под названием «Об ускорении плазмы магнитным полем», в которой развиваются идеи создания плазменного двигателя с постоянным магнитным полем. В ноябре 1964-го года был проведен первый запуск космического аппарата с плазменными двигателями и продемонстрирована их успешная работа. Плазменный двигатель имел простую конструкцию и представлял собой разрядный промежуток с двумя электродами. Подачей импульса высокого напряжения по поверхности рабочего тела, расположенного между электродами, происходил пробой. Генерирующаяся плазма ускорялась в постоянном электрическом поле. Простота конструкции обеспечивала высокую надежность работы двигателя. Сегодня плазменные двигатели широко применяются в космонавтике, в первую очередь, для маневрирования. Несмотря на большие успехи, к задаче разработки плазменного двигателя до сих пор приковано внимание исследователей из-за наличия нескольких проблем. Прежде всего это улучшение энергетической эффективности и срока службы двигателя. Дополнительно важно понимать, что каждая космическая миссия ставит конкретные требования к параметрам двигателя, в первую очередь к удельному импульсу, и поэтому важно достичь максимальной адаптивности двигателя. Разнообразие задач имеет, как следствие, разнообразие решений. В настоящее время существуют Холловские ускорители [17], ионные двигатели [18], геликонные ускорители [19], ускорители на основе дугового разряда [20] и разряда с полым катодом [21]. Приведенные выше работы опубликованы в последние годы, что говорит, во-первых, об актуальности данной тематики, а во-вторых, о связи прогресса в области космических плазменных двигателей с совершенствованием источников плазмы, изучением методов ее генерации и физических процессов в ней.

Рассмотрим дополнительно появившуюся на стыке двух наук, физики и биологии, область знания. В медицине плазменные технологии также начинают активно применяться, с каждым годом все больше становясь привычным методом терапии. Большинство медицинских приложений физики плазмы связано с использованием холодной атмосферной плазмы, ионизированные и возбужденные атомы которой взаимодействуют с молекулами и атомами окружающей среды, что приводит к образованию частиц с биологическим потенциалом. Для создания плазмы возможно использование различных типов разрядов, например, объемного диэлектрического барьерного разряда. Разряд при этом зажигается между изолированным высоковольтным электродом и тканью человека. Также используется система, состоящая из сопла и одного либо двух электродов – так называемая плазменная струя атмосферного давления [22]. Плазма генерируется внутри сопла и далее истекает во вне по направлению к

обрабатываемому телу, увлекаемая рабочим газом. С 2013 года первый источник холодной атмосферной плазмы сертифицирован как медицинское устройство [23]. Оно применяется как правило для лечения хронических болезней кожи. Высокий потенциал применения аргоновых плазменных струй для регенерации, заживления ран и обеззараживания кожи был продемонстрирован серией клинических испытаний и экспериментов с животными [24]. Другим примером является микроволновый плазматрон MicroPlasSter, который эффективен для стерилизации хронических ран [25] [26]. В настоящее время ведутся исследования возможности применения плазменных технологий для лечения рака [27]. Возможность применения основана на том факте, что плазма может провоцировать апоптоз раковых клеток. Первые исследования на животных (в том числе *in vivo*) демонстрируют противораковое действие плазмы [28].

Биологический эффект напрямую связан с параметрами плазмы, которые возможно контролировать. Сам эффект связан с активными формами кислорода, которые появляются в организме, например, в ходе обычных психофизиологических процессов. Плазма позволяет локально и кратковременно повысить их концентрацию в необходимом месте. При этом согласно всем тестам и испытаниям данная технология совершенно безопасна. Плазменная медицина является молодой ветвью физики плазмы и, вероятно, будущие исследования смогут существенно расширить ее возможности [29].

Данные примеры иллюстрируют идейно законченные (но продолжающие развитие) приложения физики плазмы, воплотившиеся в конкретных технологических устройствах, применяемых уже сегодня. Поэтому в одном ряду с ними не стоит, хотя и является, вероятно, самой обширной по объему затрачиваемых усилий и получаемых результатов, задача термоядерного синтеза. Тем не менее рассматривая роль физики плазмы, невозможно претендовать на какую-либо объективность оставив ее без упоминания. В этом же ряду необходимо отметить технологии создания многофункциональных покрытий плазменными методами, являющиеся вполне сформировавшимися методами улучшения физико-химических свойств материалов. Разрабатываются плазменные методы переработки отходов, в том числе ядерных, в которых развивается идея манипулирования ионизированным веществом посредством электромагнитного поля. Плазменные актуаторы позволяют контролировать свойства гидродинамического потока, в результате помогая увеличить подъемную тягу крыла самолета или избежать возникновения турбулентности потока. Плазменные методы используются для создания высокоэнтропийных сплавов - нового типа материалов активно изучающихся в мире в последние годы. Плазма является источником излучения, что используется как для освещения, так и для очистки воды и воздуха, к примеру, практически во всех городах России вода очищается при помощи ламп ультрафиолетового излучения. Кроме того, в истории физики плазмы есть научные проекты и технологии, уже устаревшие и закрытые,

к примеру, проект магнитного гидродинамического генератора или технология плазменного дисплея. Все эти примеры иллюстрируют обширность применения идей, развитых в рамках физике плазмы. Из рассмотрения же истории их развития можно заключить, что каждый новый шаг совершался путем совершенствования и создания новых источников плазмы. Разработка которых, велась с одной целью - добиться желаемых свойств плазменного потока, именно это позволяло достичь требуемого эффекта, будь он биологического или же физического характера. Таким образом, любая физическая задача ставит определенные условия на параметры генерируемой плазмы. Достичь требуемых параметров возможно правильно выбрав метод генерации плазмы. Как правило, существующих решений оказывается недостаточно так как, в любой практической задаче имеют место как конструкционные, так и эксплуатационные особенности. Поэтому совершенствование источников плазмы в рамках небольшого исходного базиса типов разрядов является естественным путем развития технологий. Постепенно накапливая экспериментальный опыт и фундаментальное физическое знание, мы получаем возможность решать новые недоступные ранее проблемы. Одной из подобных проблем может быть переработка отработавшего ядерного топлива.

1.2 Метод плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива

Из докладов госкорпорации «Росатом» известно, что объемы нарабатываемого в мире отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) растут [30]. Решение вопроса хранения ОЯТ путем создания ядерных могильников ведет к неизбежному загрязнению окружающей среды. Альтернативой хранению ОЯТ является переработка и последующий ресайклинг. Поэтому перед энергетикой стоит задача разработать технологию переработки ОЯТ. Исследовательские работы в данном направлении ведутся уже давно и сегодня существуют методы, позволяющие выделить из ОЯТ нераспавшуюся часть топлива – актиноиды. Например, осадительные и экстракционные технологии, заключающиеся в переводе ОЯТ в водные растворы и последующем разделении компонент ОЯТ. Кроме того, существуют неводные методы такие как пирометаллургический и пирохимические, в которых ОЯТ переводится в жидкое состояние в расплавах металлов или солей. Перечисленные подходы к переработке ОЯТ сопровождаются появлением большого количества радиоактивных отходов (РАО), т.к. приводят к отравлению среды, в которой осуществляется разделение. В следствие этого проблема хранения снова имеет место, только уже не для ОЯТ, а для РАО.

Альтернативой, не сопровождающейся появлением больших объемов РАО, может быть метод плазменной сепарации [31] [32] [33]. Наравне с пирохимическим и гидрометаллургическим методами переработки он считается технологическим решением,

способным повысить эффективность использования ядерного топлива. Суть метода плазменной сепарации заключается в преобразовании ОЯТ в поток низкотемпературной плазмы, который может быть пространственно разделен по массам в электромагнитном поле – так отделятся не распавшиеся актиноиды. Разделение в условиях квазинейтральности позволяет избежать ограничения на максимальный ток, возникающего из-за влияния объемного заряда. Это позволяет достичь большей производительности сепарации. Одна из первых работ с идеей по разделению элементов в плазме была опубликована в 1969 году уже упоминавшемся выше Морозовым А.И. [34]. В ней упоминается возможность использования плазменного укорителя для разделения ускоренных до одинаковой энергии элементов по массам, так называемая плазмооптическая сепарация, развивающаяся и сейчас [35]. В дальнейшем идея разделения элементов по массам в плазме развивалась в нескольких направлениях различными научными группами [36] [37] [38] [39].

Для практической реализации метода плазменной сепарации необходимо решить ряд научно-технических вопросов. Во-первых, достичь разделения ионов электромагнитным полем в условиях скомпенсированного заряда, что позволит повысить производительность метода по сравнению с разделением в вакууме, где величина тока ограничена влиянием объемного заряда. Это обеспечивается созданием дополнительного буферного разряда. Во-вторых, создать необходимую для разделения частиц по массам конфигурацию электрического и магнитного полей в плазме. В-третьих, решить задачу перевода конденсированного ОЯТ в плазменное состояние. Для полного выделения актиноидов вещество 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 преобладающее содержание однократных ионов в составе, а также производительность, в перспективе представляющая интерес для промышленности (~ 10 т/год [40]). Важной особенностью является состав генерируемой плазмы. Во-первых, отработавшее ядерное топливо содержит в себе более 90% диоксида урана, и это может привести к присутствию большого количества кислорода в составе паров. Во-вторых, физические параметры оксидных соединений (тепло- и электропроводность, стехиометрия и т.д.) существенно зависят от температуры. В-третьих, помимо оксида урана в составе ОЯТ присутствуют продукты ядерного распада, т.е. необходимо перевести в плазменное состояние смесь химических элементов. При этом у компонентов отличаются давления насыщенных паров, и может иметь место химическое взаимодействие при высоких температурах.

1.3 Вакуумный дуговой разряд

Дуговые разряды благодаря своим характеристикам подходят для создания высокопроизводительных источников плазмы для различных технологических задач. Как известно, к дуговым, относят разряды, характеризующиеся низким значением катодного падения потенциала, близким к энергии ионизации атомов конкретного вещества. Малость катодного падения потенциала является следствием высокого тока электронной эмиссии с катода, возникающей при высоком значении полного тока разряда $1-10^5$ А. Существует несколько механизмов электронной эмиссии с катодов, что обуславливает некоторое многообразие в реализации дуговых разрядов и их видов. Подробнее о данных механизмах будет ниже, сейчас же подчеркнем, особенную важность процесса эмиссии для обеспечения дугового режима разряда.

Низкое значение катодного падения потенциала реализуется во многих конфигурациях источников плазмы, среди которых можно выделить несколько крупных групп.

Дуговые разряды высокого давления осуществляются при давлении плазмообразующей среды близком к атмосферному 0,1-10 атм. Генерируемая при этом плазма относительно высокой плотности характеризуется высокой степенью равновесности. Так как характерная энергия электронной и ионной компонент плазмы порядка энергии ионизации, то, как правило, плазма является низкотемпературной. Существуют также разряды сверхвысокого давления (10 атм. и более), которые применяются для создания дуговых ламп сверхвысокого давления [41]. С другой стороны, существуют дуговые разряды низкого давления соответствующие примерно диапазону $10^{-3}-10^{-6}$ атм. Предельным случаем могут считаться вакуумные дуговые разряды, в которых плазмообразующей средой выступают продукты эрозии или испарения электродов разряда.

Альтернативным вариантом классификации является разделение по характеру процессов на поверхности катода. В этом случае можно провести разделение на две группы. Первая - дуговой разряд с горячим катодом, средняя температура которого является достаточной для обеспечения высокого тока термоэлектронной эмиссии. Данный тип разряда может быть как самостоятельным, так и несамостоятельным, например в случае внешнего подогрева катода. Примерами данного типа дуги являются сварочный аппарат или устройства вакуумно-дуговой плавки [42]. Вторая группа – дуговые разряды с катодными пятнами. Данный тип разряд возникает в случае, когда средняя температура катода является недостаточной для обеспечения необходимой для замыкания тока разряда величины термоэмиссии. В результате происходит локализация плотности тока разряда в так называемых катодных пятнах. Величина плотности тока в пятнах может достигать очень высоких значений вплоть до 10^7 А/см², из-за чего

происходит локальный разогрев материала катода. Физика процессов в катодных пятнах весьма сложна и разнообразна из-за чего общепринятой модели до сих пор не существует.

Существуют также специфические виды дуговых разрядов. Например, скользящий дуговой разряд, инициируемый между расходящимися металлическими электродами. Подобная конфигурация позволяет генерировать низкотемпературную неравновесную плазму, и соответствующие источники плазмы находят применение в химической промышленности [43].

Приведенная выше классификация не является взаимоисключающей, так как каждый конкретный дуговой разряд относится к одной из групп: по давлению плазмообразующей среды, по типу плазмообразующей среды, по механизму эмиссии, самостоятельности/несамостоятельности, виду тока (импульсный или проточный) и ряду других параметров. Подобное многообразие обосновывает роль дуговых разрядов в технологических приложениях, так как обеспечивает крайне широкий диапазон возможных характеристик плазмы при различных конфигурациях источника.

Перейдем к рассмотрению типа дугового разряда исследованного в данной работе. ВД разряд может быть реализован в нескольких режимах. Разряд с обширной горячей зоной на катоде может быть отнесен к так называемым термоионным дуговым разрядам [44]. Отличительной особенностью данного режима является стационарность горения разряда и низкая в сравнении с дугой на холодном катоде амплитуда флуктуаций напряжения. Отметим, что термоионные дуговые разряды могут быть как с режимами с пятнами, так и без. Режимы дуговых разрядов с холодными катодами различаются по типу наблюдаемых катодных пятен. Катодные пятна как уже упоминалось выполняют важнейшую роль для замыкания тока разряда – выступают источниками плазмообразующей среды и электронов. При этом ключевыми параметрами являются не только лежащие на поверхности: значение тока дуги, величина внешнего магнитного поля, расстояние между катодом анодом, но и материал катода (его теплофизические свойства и химический состав), структура его поверхности. По этой причине представленные в литературе пятна часто отличаются друг от друга по ряду свойств. Тем не менее существует несколько подходов к их классификации.

В работе [45] приводится классификация катодных пятен. К первому типу автор относит нестационарные быстро движущиеся пятна. Ко второму типу квазистационарные медленно движущиеся пятна или группы пятен. В контексте данной работы особенно важны последние – квазистационарные пятна сложной структуры. В обзорной работе [46] суммируются экспериментальные результаты и среди прочего приводятся рассматривавшие структуру пятен работы.

В более поздней работе [47] приводится альтернативная классификация катодных пятен в зависимости от их стационарности и параметров катода. Нестационарные пятна, наблюдаемые

на холодных катодах, в свою очередь, разделяются на два типа для случая токов разряда ниже 10 кА. К первому типу относятся пятна на поверхности покрытых оксидной пленкой катодов [48]. Для них характерна скорость блужданий 10-100 м/с, размер кратеров 0,1-1 мкм и средний ток на пятно 01-3 А. Ко второму типу относят пятна с химически чистой металлической поверхностью. Скорость пятен этого типа 0,1-1,0 м/с, а размер кратера примерно на порядок больше, чем у пятен первого типа [49]. В случае нестационарных пятен разряд характеризуется высокой относительной амплитудой колебаний напряжения разряда 10-100 % [50]. Стационарные катодные пятна наблюдаются на горячих катодах ($T > 1$ кК). Отдельно рассматриваются пятна при давлении ниже 10^4 Па и пятна при больших давлениях. При более высоком давлении пятна несколько меньше 0,1-10 мм², в сравнении с 1-100 мм² и менее стационарны, т.е. могут менять место локализации. Относительная амплитуда флуктуаций напряжения в обоих случаях значительно меньше, чем в случае холодных катодов и составляет порядка 0,1 %.

Диффузным вакуумным дуговым (ДВД) разрядом или вакуумным дуговым разрядом с диффузной катодной привязкой (ДКП) называется разряд, реализуемый при высоких температурах катода (1,0-2,5 кК) и отличающийся отсутствием катодных пятен. Согласно приведенной выше классификации вакуумных дуг может считаться подвидом термоионного вакуумного дугового разряда. Следствием отсутствия катодных пятен является относительная однородность распределения температуры на поверхности катода, благодаря которой в потоке генерируемой плазмы отсутствует капельная фракция катодного материала, характерная для дуг с контрагированных разрядов. Напряжение разряда стабильно и также как в случае термоионных дуг с пятнами составляет порядка 0,1% от общего напряжения. Плотность тока относительно мала и составляет 10–100 А/см², эмиссия паров и термоэлектронов происходит со всей поверхности катода, а свечение плазмы распределено равномерно над катодом.

Для достижения необходимой температуры, как правило, требуется дополнительный нагрев катода внешним источником энергии. В этом случае речь идет о несамостоятельном разряде. Если же разогрев катода за счет ионной бомбардировки достаточен для достижения температуры катода, соответствующей условиям поддержания разряда, тогда он существует самостоятельно.

Исследования вакуумного дугового разряда с ДКП начались в конце XX века [51] [52] [53] [54]. В последнее время интерес к разряду с ДКП значительно возрос в связи с возможностью его использования в технологии плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива [55] [56] [57].

Важнейшую роль в дуговых разрядах играют процессы в прикатодной области или иначе катодном слое (КС), так как именно в ней происходит формирование плазмы. Условия, в которых реализуется разряд, представляют собой динамическое равновесие множества процессов,

обеспечивающих необходимые для протекания электрического тока условия. С точки зрения построения модели дугового разряда процессы можно разделить на несколько групп [58]. К первой группе относятся процессы, отвечающие за тепловой баланс катода, т.е. джоулев нагрев, ионная бомбардировка, теплопроводность и т.д.. Ко второй процессы формирования плазмообразующей среды: эмиссия электронов, испарение атомов и молекул материала катода. К третьей процессы формирования прикатанного скачка потенциала, говоря общими словами это динамика заряженных частиц. К последней группе относятся процессы формирования плазмы, т.е. ионизация и рекомбинация. Сразу видно, что процессы в разных группах связаны между собой. К примеру, главным параметром в термоэлектронной эмиссии является температура поверхности катода, определяемая процессами первой группы. Температура катода в свою очередь зависит от процесса ионной бомбардировки, т.е. связана с процессами третьей и четвертой групп. Иными словами, имеет место сложная обратная связь, существенно осложняющая теоретическое рассмотрение дуговых разрядов. Отмеченные выше процессы неизбежно должны быть учтены при анализе и интерпретации экспериментальных данных.

Попытки построения физических моделей диффузных вакуумных дуговых разрядов делались в нескольких научных группах. Рассмотрим кратко применяемые в них подходы. В работах [59] [60] строилась кинетическая модель катодного слоя вакуумной дуги с учетом немонотонного распределения потенциала в прикатодной плазме. По мнению авторов [59] [60], именно наличие “горба” потенциала является условием поддержания высокой степени ионизации плазмы в близкой к катоду области. “Горб” представляет собой потенциальную ловушку для электронов, за счет их осциллирующего движения обеспечивается эффективная наработка плазмы. Ионизация атомов, вылетевших с катода, приводит к обратному току ионов на поверхность катода, если они ионизовались на подъеме “горба” (со стороны катода). Если ионизация произошла после максимума, то эти ионы ускоряются в сторону анода. За “горбом” потенциала по направлению к аноду присутствует локальный минимум – ловушка для ионов. Накопление ионов в этой области позволяет скомпенсировать пространственный заряд электронов и обеспечить высокие плотности тока при низком напряжении разряда по аналогии с задачей о вакуумном диоде с ионной компенсацией.

В рамках построенной авторами [59] [60] модели определялась скорость ионизации атомов в КС с линейным распределением электрического поля. При этом предполагалось максвелловское распределение электронов и ионов по скоростям, ток электронов эмиссии с катода определялся по формуле Ричардсона с поправками на эффект Шоттки, и записывалось уравнение баланса энергии на катоде. В модели предполагалась однократная ионизация атомов. В результате была получена система уравнений с двумя свободными параметрами – температурой электронов и плотностью тока.

Авторы [59] [60] допускали применение построенной модели для дуговых разрядов различных типов, однако сопоставление результатов расчетов с экспериментами производили в более простом случае – по данным работ, посвященных исследованиям дуг с ДКП. Были вычислены зависимости катодного падения и температуры катода от плотности тока в диффузной дуге на хrome. Полученные данные хорошо согласуются с экспериментом [51]. По данным расчетов, диапазон плотностей тока 10–30 А/см² соответствовал температуре катода ~2,1–2,2 кК при катодном падении потенциала 17–22 В. В соответствии с предложенной теорией катодное падение превышало измеренное падение напряжения на всем разрядном промежутке, которое составляло 12–14 В. По расчетам плотность тока на катоде определяется тремя составляющими: током эмиссии, током ионов и обратным током электронов. Соотношение между ними таково, что ток разряда практически полностью обеспечивается обратным током ионов.

В работе [61] предлагается альтернативное рассмотрение механизмов переноса тока на не термоэмиссионных катодах, а также с источников нагрева термоэмиссионных катодов. Для катодов с дефицитом термоэмиссии обычный механизм переноса заряда, характеризующийся большой электрической мощностью, переданной от источника питания электронному газу в прикатодной области, не позволяет обеспечить наблюдаемую в экспериментах плотность тока. В работе [61] предполагается, что мощность передается электронам в основном объеме плазмы разряда, а ток на катод обеспечивается ионами, диффундирующими к катодному слою из области квазинейтральной плазмы. Этот режим аналогичен трансферу ионного тока к электростатическому зонду в плазме. Высокая температура электронов в ионизационном слое поддерживается электронной теплопроводностью из основного объема плазмы. Исходя из предложенной гипотезы, сделаны оценки плотности ионного тока на катоде и проведено сравнение с данными о плотности тока на катоде из экспериментов [51] [62].

1.4 Диффузная вакуумная дуга с термоэмиссионными катодами

Как уже отмечалось выше одними из ключевых процессов в прикатодной области дугового разряда являются испарение атомов и эмиссия электронов с поверхности катода. В случае стационарной вакуумной дуги поток испаренных атомов можно рассчитать с помощью формулы Герца-Кнудсена [63]

$$J_0 = \frac{p_s}{\sqrt{2\pi m_a k T_c}}, \quad (1)$$

где p_s – давление насыщенных паров материала катода, m_a – масса атома.

Плотность потока ионов на поверхность катода будет пропорционально данной величине:

$$J_i = \langle q \rangle J_0, \quad (2)$$

$\langle q \rangle$ - средний заряд плазмы (выражение можно интерпретировать как определение среднего заряда).

Минимальная плотность тока электронной эмиссии может быть оценена по закону Ричардсона-Дэшмана [64]:

$$J_{e\min} = A_0 T_c^2 \exp(-\phi/kT_c), \quad (3)$$

где $A_0=120 \text{ A}/(\text{см}^2\text{K}^2)$ – эмиссионная постоянная.

Данные выражения позволяют получить оценку относительной доли ионного тока на поверхности катода [52]

$$S_{ae} = eJ_a/J_{eT} = p_s \exp(\phi/kT_c) / (A_0 T_c^{5/2} \sqrt{2\pi k m_a}), \quad (4)$$

где S_{ae} - атом-электронное отношение, т.е. отношение потоков термически испаренных атомов и электронов.

Из выражения (4) видно, что атом-электронное отношение зависит от температурной зависимости давления насыщенных паров и работы выхода конкретного материала катода. На основе данного выражения материалы катодов можно разделить на две группы [52]. Рассмотрим сначала металлические катоды. Для условно легкоплавких металлов, к которым относятся, в частности, Hg, Zn, Cu, Cr, Fe, это отношение много больше единицы ($S_{ae} \gg 1$). Для тугоплавких металлов (W, Mo, Ta, Nb) атом-электронное отношение, наоборот, много меньше единицы ($S_{ae} \ll 1$). Малые значения S_{ae} также характерны для лантаноидов и актиноидов (La, Gd, U, Th и др.). Свойства вакуумного дугового разряда могут отличаться для этих групп, т.к. доля ионного тока является одним из параметров энергетического баланса на поверхности катода [64] [65]. Для металлов с малым атом-электронным отношением ($S_{ae} \ll 1$) доля ионного тока на катоде невелика, и поэтому неясен механизм нагрева катода. На катодах из «легкоплавких» металлов ($S_{ae} \gg 1$) мала доля тока ТЭЭ. Считается, что в вакуумных дугах с контрагированной катодной привязкой (ККП), из-за высокой плотности тока, напряженность электрического поля E на поверхности катода достаточна для термоавтоэлектронной или автоэлектронной эмиссии [64]. Напряженность поля E возрастает с ростом плотности тока J_c , поэтому в ККП с плотностью тока свыше $0,1 \text{ MA}/\text{см}^2$ электрическое поле, возможно, существенно увеличивает ток эмиссии электронов. В дуге с диффузной катодной привязкой (ДКП) на хrome ($S_{ae} \sim 10^4$) плотность тока была $J_c < 100 \text{ A}/\text{см}^2$, поэтому влияние электрического поля на эмиссию электронов мало, а доля тока термоэлектронной эмиссии (ТЭЭ) на катоде составляла $\sim 10^{-4}$ [51]. Авторы работы [51] высказали предположение, что перенос заряда на

катоде из хрома происходил в результате эффекта аномально высокой эмиссии электронов (АВЭЭ). Однако, возможный механизм АВЭЭ не приведен.

В работе [66] показано, что атом-электронное отношение S_{ae} можно использовать в качестве одного из критериев подобия для описания интегральных характеристик вакуумных дуг на различных катодах: напряжения горения, удельной эрозии, времени жизни дуги, среднего тока на ККП и других.

Приведем подробное изложение результатов исследований диффузной вакуумной дуги, прямым продолжением которых является данная работа. Начнем с рассмотрения работ, посвященных изучению вакуумных дуг с ДКП на веществах с малым атом-электронным соотношением. Наиболее изученным разрядом в этом классе катодных материалов является ВД на катоде из гадолиния ($S_{ae} \approx 0,05$). Также в разделе представлено описание разряда на катоде из углерода (графита) ($S_{ae} \approx 0,01$).

Первые исследования разряда с ДКП на гадолинии (Gd) были начаты в ОИВТ РАН. В экспериментах использовалась экспериментальная установка, описанная в работах [52] [53] [54] [40]. В этих работах измерялись ток дуги I , напряжение на дуге V_a , мощность электронно-лучевого подогрева (ЭЛП) N , температура катода и тепловой поток, поступающий из плазмы на катод, скорость испарения катода. В работах [67] [68] [69] исследовались спектры излучения плазмы, зондовым методом были измерены параметры плазмы на периферии катодной струи в межэлектродном промежутке и в пространстве за анодом, многосеточным зондом определялась энергия ионов в катодной струе, при помощи конденсационного зонда, установленного за анодом, оценивался средний заряд ионов Gd.

На рисунке 1.1 для тока дуги 50 А приведены напряжение на дуге V_a и вольт-эквивалент (ВЭ) V_{ef} в зависимости от мощности подогрева тигля при помощи электронно-лучевой пушки [53]. Как видно, значения V_a и V_{ef} монотонно возрастают с уменьшением мощности N . При $N \approx 0,55$ кВт вольт-эквивалент обращается в ноль, то есть поток энергии из плазмы компенсирует потери энергии на эмиссию электронов. В режиме с $V_{ef} = 0$, по-видимому, дуга не искажает температурное поле на поверхности расплава Gd.

Как следует из рисунка 1.1, разряд с ДКП мог гореть и без внешнего подогрева. При минимальном токе $I \approx 30$ А напряжение на дуге достигало ~ 100 В, а величина ВЭ 15 В. Напряжение V_a возрастало примерно обратно пропорционально току дуги, аналогичная зависимость от тока фиксировалась и для ВЭ.

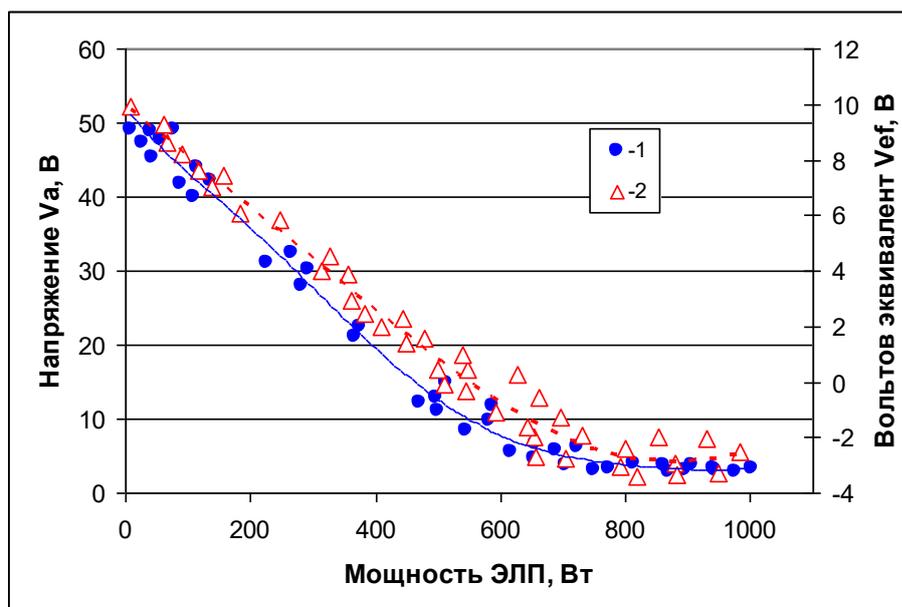


Рис. 1.1. Зависимость напряжения на дуге и вольтова эквивалента $V_{ef}(2)$ от мощности ЭЛП, $I=50$ А [53].

На рисунке 1.2 в зависимости от напряжения на дуге приведены значения температуры электронов, измеренные над тиглем (ток 40 А) [54] [70], на расстоянии 21 мм от оси разряда (ток 44 А) [71], и за анодом (ток 40 А) [67]. Как видно, температура электронов во всех зонах разрядного промежутка определяется, в основном, значением напряжения на дуге и возрастает от ~ 1 до 5 эВ и более при повышении напряжения с 3 до 10 В.

На рисунке 1.2 для тока дуги 52 А приведена зависимость среднего заряда ионов гадолия Z_i , а также зависимости отнормированных по максимумам интенсивностей спектральных линий атомов и двух первых ионов Gd от напряжения на дуге [72]. Средний заряд Z_i определялся при помощи конденсационного зонда, который представлял собой молибденовый диск, установленный за анодом на расстоянии 25 мм. Во время измерений на зонд подавался отрицательный потенциал (~ 30 В относительно потенциала анода). За время экспозиции (~ 10 мин) измерялся заряд, протекший через зонд, и увеличение его массы, которое составляло $\sim 10\%$ от всей массы Gd, испарившегося из тигля. Из этих данных определялся средний заряд Z_i . При этом принималось, что коэффициент конденсации атомных частиц Gd равен единице. Излучение плазмы собиралось на расстоянии около 3 мм над выходным отверстием тигля. Как следует из рис. 1.3, зависимость интенсивности ионных линий от напряжения на дуге качественно согласуется с зависимостью $Z_i(V_a)$. При напряжении $V_a \cong 5$ В плазма катодной струи полностью ионизована и в ней преобладают однозарядные ионы. Полученная зависимость распределения

зарядов ионов в катодной струе от напряжения дуги подтверждается масс-спектроскопическими измерениями.

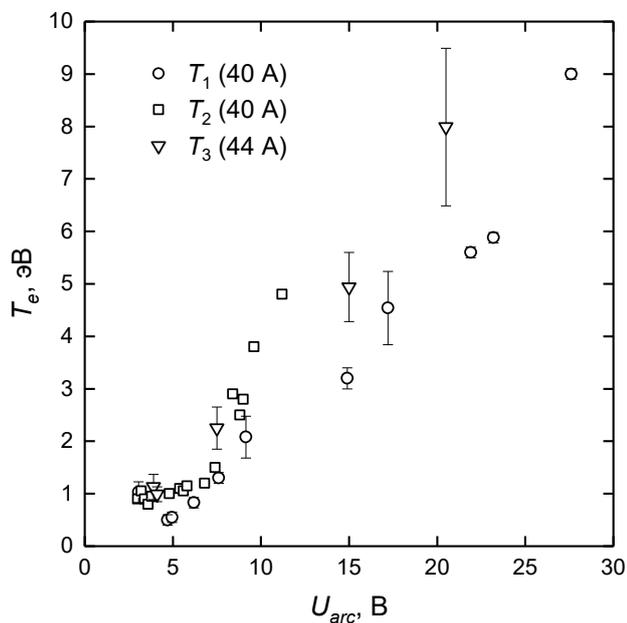


Рис. 1.2. Температура электронов плазмы в разрядном промежутке T_2 , T_3 и на расстоянии 7 см над анодом T_1 в зависимости от напряжения разряда [67].

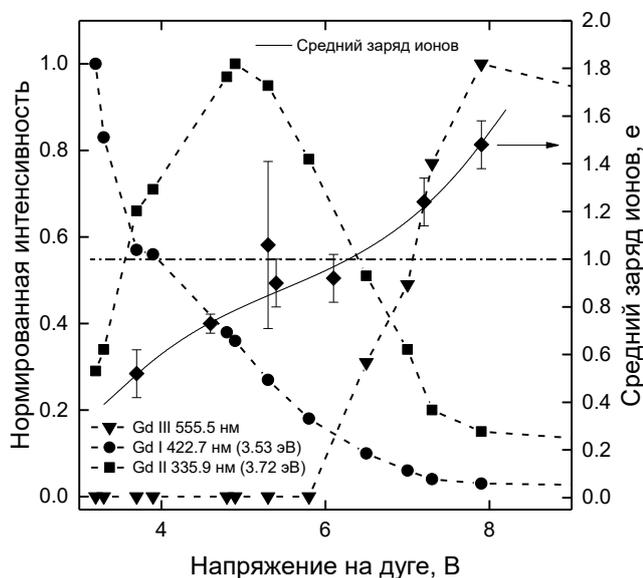


Рис. 1.3. Поведение интенсивности линий излучения атомов и ионов гадолиния, а также среднего заряда ионов заанодной плазмы в зависимости от напряжения на дуге [72].

В работе [69] измерялась функция распределения ионов гадолиния по энергиям (ФРЭ) методом задерживающего потенциала. Анализатор ФРЭ был размещен вдоль оси разряда за анодом на расстоянии 20 см от него. Измерения ФРЭ ионов проводились при значениях тока 30,

50 и 75 А при варьировании напряжения на дуге. Величина тока слабо влияла на энергии ионов. На токе 50 А при увеличении напряжения от 5 до 12 В наиболее вероятные значения кинетической энергии ионов с учетом данных об их среднем заряде (рисунок 1.3) увеличивались от 5 до 55 эВ. Температура электронов вблизи анализатора возрастала от 0,5 до 2,0 эВ. Эти значения близки к тем, что были зарегистрированы в самостоятельном разряде с ККП на катоде из Gd: при токе 100 А и падении напряжения 20 В, кинетическая энергия ионов составляла 55 эВ, температура электронов – 1,7 эВ, средний заряд ионов – 2.2 [73].

Представленные результаты свидетельствуют о том, что, изменяя мощность подогрева катода, можно в достаточно широком диапазоне регулировать параметры катодной струи – температуру электронов, энергию ионов и их заряд.

Вторым термоэмиссионным материалом, на котором ДВД была достаточно подробно исследована, является углерод. Источник сильно ионизованной плазмы вызывал значительный интерес и в целях выращивания тонких углеродных пленок высокой плотности [74]. Требования к отсутствию капель являлись основными, что должно было обеспечивать высокое качество напыления. По этой причине пристальное внимание было обращено к разряду с ДКП на катоде из углерода, и его последующему использованию с катодами из полупроводникового кремния и германия [75]. В работе [75] исследовался источник плазмы с самоподогревным теплоизолированным углеродным катодом, на котором реализовывался распределенный разряд. Авторами проведено сравнение характеристик полученного разряда с контрагированной дугой.

Исследуя параметры разряда, авторы [75] в первую очередь отметили разный характер колебаний напряжения двух разрядов. При одинаковом токе 60 А среднее значение напряжения диффузного разряда составляло около 31 В и колебалось в диапазоне ± 1 В. В контрагированном же разряде среднее напряжение было ниже, на уровне 20 В, однако его колебания составляли ± 5 В. Разряд в диффузном режиме значительно отличался визуально, наблюдалось равномерное свечение, микрокапельная составляющая отсутствовала, что определялось по отсутствию светящихся треков на фотографиях дуги. Нижняя граница рабочей температуры катода, измеренная на границе светящегося диффузного пятна привязки дуги, находилась в диапазоне 1,8-2,4 кК. Заметим, что при этих температурах давление насыщенных паров углерода не превосходит 0.01 Па, а оцененная по данным [76] плотность тока ТЭЭ составляет около 0.2 А/см². Для обеспечения же нужной плотности тока за счет термоэмиссии температура катода в рабочей области должна быть на уровне 2,8-3,0 кК. При исследовании относительного распределения температуры катода (без абсолютных измерений) авторы [75] наблюдали большую пространственную протяженность активной области привязки разряда, которую связывали с формированием однородной плазмы.

Параметры образующейся углеродной плазмы имели типичные для вакуумной дуги значения. Концентрация электронов была порядка 10^{12} см⁻³, а температура составляла 5-7 эВ. Энергетическое распределение ионов разряда с ДКП представлено на рисунке 1.4 в сравнении с дугой с ККП. Как наиболее вероятная энергия ионов, так и ширина распределения в диффузной дуге были ниже, чем в контрагированной. Кроме того, распределение по энергии ионов дуги с холодным катодом имело высокоэнергичный хвост. При этом, авторами отмечается, что средний заряд ионов, в обоих дуговых режимах близок к единице.

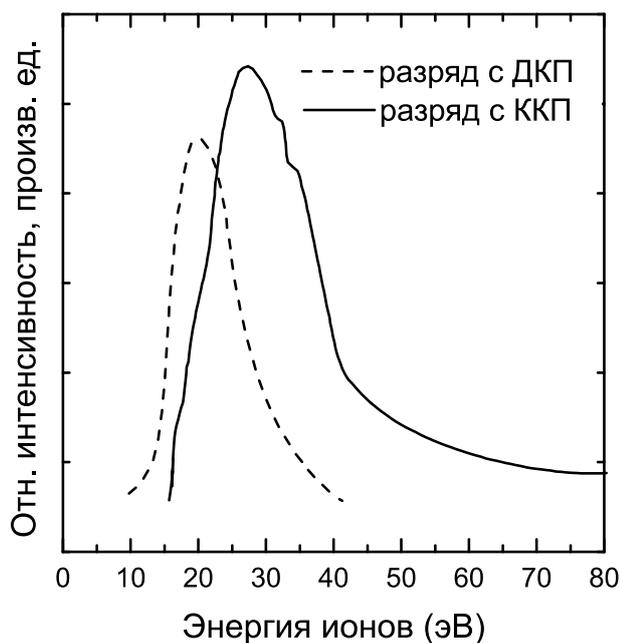


Рис. 1.4. Распределение ионов по энергии для дуги с катодным пятном и диффузной дуги [75].

Проведенное исследование позволяет утверждать, что ДВД может быть успешно реализована на таком тугоплавком материале как углерод. Авторы [75] отмечают, что смогли реализовать диффузную форму и на кремниевом катоде, однако последующей публикации не последовало. Дальнейшие работы данной научной группы были сфокусированы на исследовании другой формы стационарного вакуумного дугового разряда на графите, особенностью которого стало образование полости в катоде [77].

1.5 Диффузный вакуумный дуговой разряд с не термоэмиссионными катодами

Вакуумные дуги с низкой плотностью тока на катодах с недостатком электронов термоэмиссии широко изучались в нескольких научных группах. Исследовались разряды на катоде из хрома, свинца и титана, применялись различные экспериментальные схемы для реализации именно диффузного режима горения дуги. Дуга была реализована как в отсутствии косвенного нагрева катода (хром), так и с применением дополнительного электронного пучка, сканирующего его поверхность (титан). В результате исследований были созданы генераторы плазмы металлов с колоссальной производительностью по величине ионного тока (> 100 А), используемые для обработки поверхностей сталей и создания функциональных покрытий.

ВД с диффузной привязкой на катоде из хрома исследовалась в работах [51] [62]. Разряд на свинцовом катоде изучался в экспериментах [78] [79]. Отметим, что для свинца атом-электронное отношение составляет $S_{ae} \sim 10^8$, т.е. на четыре порядка больше, чем у хрома.

На рисунке 1.5 приведены вольт-амперные характеристики (ВАХ) разрядов на Cr и Gd, которые были получены при одинаковой геометрии электродов [62]. Как видно, напряжение на термоэмиссионном катоде из Gd значительно больше, чем на неэмиттирующем катоде из Cr. По данным [51] при увеличении тока с 40 до 400 А напряжение на дуге возрастало с 12 до 14 В; из рисунка 5 следует, что увеличение тока с 30 до 220 А сопровождалось снижением напряжения с 22 до 12 В. Отличие значений напряжения на дуге, вероятно, связано с различием в геометрии разрядного промежутка в экспериментах [51] [62]. При этом значения скорости испарения Cr в работах [51] и [62] были близки. Коэффициент электропереноса в разряде на Cr был примерно на порядок больше, чем на Gd, и составлял $\gamma \sim 0,1$ атом/электрон. Из-за более высокой скорости испарения Cr слагаемое Q_{ev} в балансе (2), строго говоря, следует учитывать. Величина соответствующей поправки к величине ВЭ, приведенной на рисунке 1.5, может достигать ~ 1 В.

Разряд исследовался в диапазоне токов от 10 до 70 А. В отличие от разряда на катодах из Cr и Gd увеличение тока в разряде со свинцовым катодом сопровождалось ростом напряжения с 12 до 25 В ($N=0$). Температура электронов в плазме за анодом по данным зондовой диагностики при увеличении тока с 15 до 40 А снижалась с 1,2 до 0,4 эВ ($N=0$). Средний заряд ионов Z , измеренный конденсационным зондом, изменялся в пределах 0,17-0,28.

Диапазон значений температуры катода составлял от 1,3 до 1,6 кК. С ростом мощности ЭЛП увеличивалась не только температура катода, но и напряжение на дуге, чего не было в разрядах на Cr и Gd.

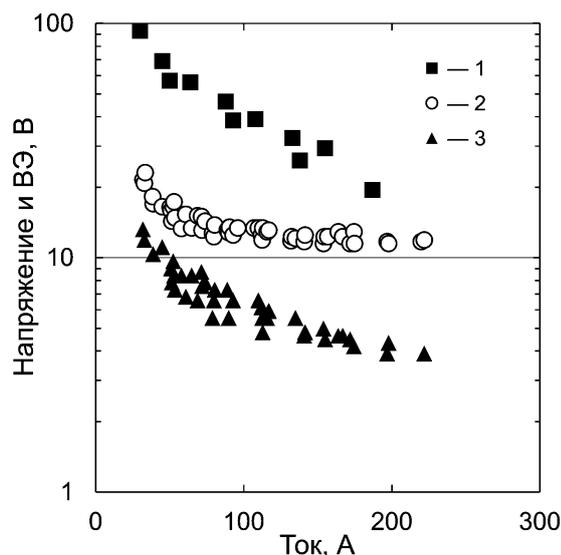


Рис. 1.5. ВАХ разряда на гадолинии (1) и хrome (2), вольтов эквивалент V_{ef} для хрома (3), $N=0$ [62].

Измеренная скорость испарения Pb в разряде была сопоставлена с рассчитанным значением скорости испарения из тигля в вакуум [79]. Из этого сравнения следует, что в дуговом разряде около 90% испаренных атомов свинца возвращались на катод в виде атомов или ионов. В отсутствие ЭЛП коэффициент электропереноса составлял $\gamma \sim 0,5$ атом/электрон.

Из-за высокой скорости испарения свинца методика измерения теплового потока из плазмы на свинцовый катод имеет свои особенности, которые поясняются на рисунке 1.6. Потери на испарение для случая свинца составляют существенную долю уносимой с катода мощности. На рисунке 1.6 в зависимости от мощности ЭЛП нанесена измеренная температура пустого тигля $T_c(N_e)$ и тигля $T_c(N_0)$, заполненного свинцом. По методике, описанной в [79], рассчитаны значения N_{ev0} – потери энергии с тигля в единицу времени на испарение Pb. С учетом этих потерь из зависимости $T_c(N_e)$ была рассчитана зависимость температуры тигля со свинцом. На рисунке 6 также нанесены значения температуры тигля для двух токов дуги. Как и для катода из хрома, зависимость $T_c(N_a)$ лежит выше калибровочной кривой. Как следует из данных рисунка 1.6, с учетом измеренной скорости испарения G_a величина ВЭ изменялась в диапазоне от 4 до 10 В.

Работа выхода Pb $\phi=4,0$ эВ [80], поэтому при характерной температуре катода 1,4 кК, плотность тока ТЭЭ составляет ~ 1 мкА/см², что на семь порядков меньше, чем характерное значение плотности тока дуги на катоде. Если принять точку зрения [51], то на катоде из Pb, как и на катоде из Cr реализуется АВЭЭ. В действительности, это, вероятно, не так, и есть достаточно

оснований полагать, что на всех катодах с $S_{ae} \gg 1$ заряд на катоде переносится, в основном, ионами - $S_i \cong 1$.

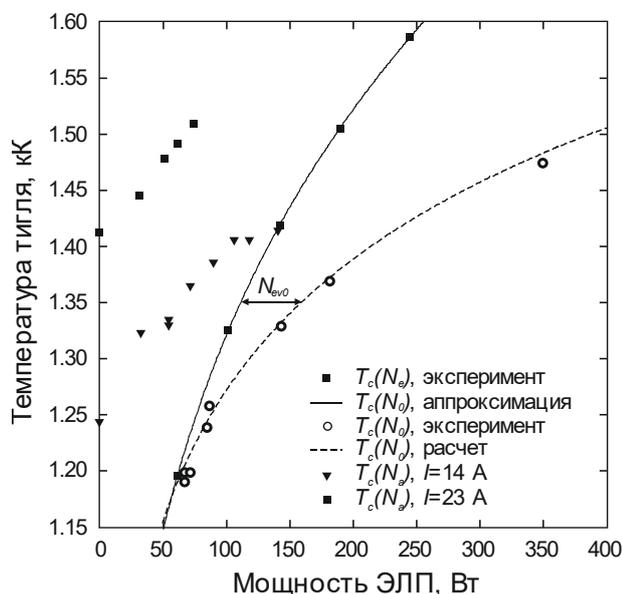


Рис. 1.6. Потоки тепла из плазмы на катод: $T_c(N_e)$ и $T_c(N_0)$ – калибровочные характеристики пустого тигля и тигля с Pb соответственно, $T_c(N_a)$ – температура катода. N_{ev0} – мощность потерь на испарение Pb [79].

Во-первых, возможная плотность ионного тока на катод достаточна, чтобы обеспечить наблюдаемые значения. При характерной температуре катода 1.4 кК давление насыщенных паров Pb составляет 0,85 кПа, из формулы (3) максимально возможное значение плотности ионного тока 70 A/cm^2 . Если степень ионизации паров Pb вблизи катода такая же, как и за анодом ($\cong 20\%$), то фактическая плотность тока ионов на катод может составить $\cong 15 \text{ A/cm}^2$, что согласуется с характерным значением.

Во-вторых, гипотеза об ионном переносе заряда на поверхности легкоплавких катодов не противоречит балансу энергии. При ионном переносе заряда ($S_i \cong 1$) кинетическая энергия ионов на поверхности катода находится из соотношения:

$$V_{ef} = (W_k + W_i - \varphi)/e, \quad (5)$$

Из данных о ВЭ для разрядов на Pb и Cr следует, что минимальное значение кинетической энергии ионов на поверхности катода составляет $W_k \cong 1 \text{ эВ}$ [79], [81].

В работе [81] описана качественная модель КС дуги на легкоплавких катодах, в которой учитываются результаты экспериментов [62] [79]. В соответствии с этой моделью распределение

потенциала в КС является немонотонным, максимум потенциала находится на расстоянии порядка длины ионизации от катода. По оценкам [81], для разряда на катоде из хрома длина ионизации составляет $\sim 0,3$ мм. Вблизи максимума потенциала находится и максимум температуры электронов. Диффузионное и дрейфовое слагаемые в уравнении движения электронов вблизи катода компенсируют друг друга, так что электронный ток на поверхности катода $J_e \cong 0$. Энергия, необходимая для ионизации пара, поступает в катодную область вследствие электронной теплопроводности.

Энергия, выделившаяся в КС, отводится теплопроводностью вглубь катода, и выносится электронами в сторону анода, поэтому величина катодного падения:

$$V_c \cong V_{ef} + 2.5kT_e/e, \quad (6)$$

где T_e – температура электронов вблизи максимума потенциала. Вблизи максимума потенциала градиент температуры электронов мал, поэтому электронную теплопроводность в балансе энергии (8) можно не учитывать. Принимая для оценок $T_e \cong 2$ eV, из этого баланса энергии находим величину катодного падения для разряда на катоде Cr $V_c \cong 10-15$ В, что близко к полному падению напряжения на дуге.

ДВД широко изучалась для задач нанесения покрытий на основе титана [82] [83]. При условиях на катоде диффузной вакуумной дуги атом-электронное соотношение для титана $S_{ae} > 1$. Особенностью описанных в научной литературе экспериментальных схем был непосредственный нагрев поверхности титана электронным пучком. В этих экспериментах плотность тока электронного пучка была существенно ниже плотности тока дуги, поэтому он не был основным источником ионизации частиц в плазме.

Первое упоминание диффузной вакуумной дуги с титановым катодом было сделано в работе [84]. Ее целью являлось, в основном, измерение пространственного распределения электрического потенциала в разрядном промежутке для построения теоретической модели диффузного разряда. В работе [84] титановый катод располагался в теплоизолированном молибденовом тигле диаметром 5 мм. Анод находился на расстоянии 70 мм от катода. Электронная пушка, используемая для нагрева катода, располагалась за анодом, и генерировала пучок, распространявшийся по оси разряда через отверстие в аноде (рисунок 1.7). Варьирование параметров пучка позволяло изменять ток разряда от 0,1 до 12,0 А в несамостоятельном режиме. Измерения распределения потенциала плазмы осуществлялось путем измерения плавающего потенциала подвижным зондом, и дальнейшего пересчета данных плавающего потенциала в потенциал пространства с известной температурой электронов ~ 2 эВ.

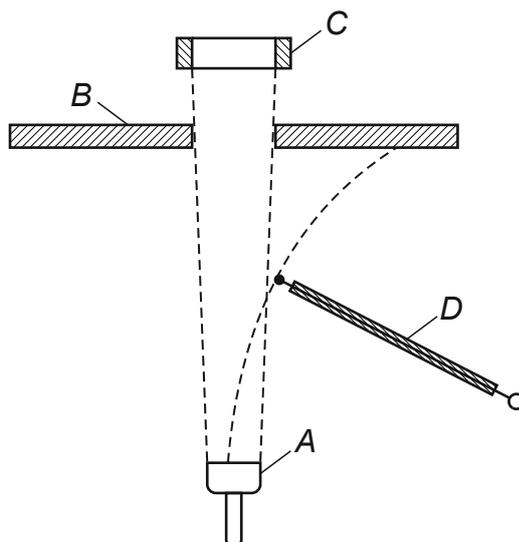


Рис. 1.7. Схема экспериментальной установки диффузной вакуумной дуги на катоде из титана. А – катод, В – анод, С – электронная пушка, D – зонд [84].

По данным авторов, распределение электрического потенциала внутри разрядного промежутка немонотонно и сильно зависит от мощности электронного пучка. Так при одинаковом токе дуги 2 А, максимум потенциала уменьшался от 120 до 45 В при увеличении мощности пучка от 100 до 200 В. При этом напряжение дуги падало с 12 до 4 В. Более подробно распределение потенциала в дуговом разряде измерено авторами при помощи вспомогательной экспериментальной схемы с изменяемым атом-электронным соотношением в газовом разряде. Показано, что атом-электронное отношение определяет форму распределения электрического потенциала в разряде, при атом-электронном отношении, превышающем единицу, в распределении потенциала присутствует «горб», а при увеличении концентрации электронов потенциал может стать монотонным. Сравнивая же диффузную и контрагированную дуги авторы приходят к выводу, что физические процессы в них одинаковы, отличие состоит только в реализующейся плотности тока и внешнем виде разряда. Значительная часть работы [84] посвящена также обсуждению разности между скоростями эрозии катодного материала в дуге и при испарении в вакуум без дуги. По мнению авторов, именно наличие «горба» потенциала позволяет объяснить различия в скоростях эрозии, наблюдаемых в эксперименте.

Активное исследование диффузного вакуумного разряда с катодом из титана для практического применения производилось двумя группами ученых в Германии [85] [86] и Японии [87] [88]. В работах [85] [86] для нагрева титана использовалась электронная пушка мощностью до 300 кВт. Координата привязки пучка управлялась магнитной системой. Ток реализованного дугового разряда достигал 2 кА при напряжении, не превосходящем 30 В.

Вольтамперные характеристики этого разряда в зависимости от мощности электронного пучка представлены на рисунке 1.8.

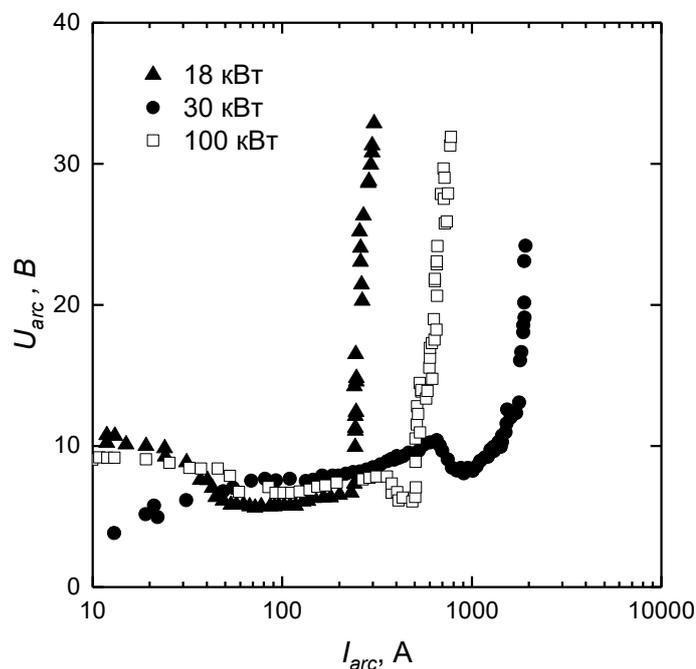


Рис. 1.8. Напряжение дуги как функция тока из работы в зависимости от мощности электронного пучка, греющего катод [85].

Ионный ток, регистрируемый на обрабатываемой подложке, варьировался в пределах 5-15 % от тока дуги. По оценкам, степень ионизации плазмы у подложки превышала 50%. Анализ напыления показал, что поверхность пленки титана, полученная при испарении электронным пучком в присутствии дуги, является более гладкой и плотной, чем при испарении только при помощи электронного пучка. Эти работы получили дальнейшее развитие, напыление начало производиться в присутствии кислорода или азота, и в дополнение к катоду, расходуемым также стал и анод [89] [90].

Свойства плазмы, реализующейся в подобной системе с титановым катодом, подробнее изучены в работе [88]. Автор [88] называет полученный разряд дугоподобным, а механизм генерации плазмы в нем аналогичен диффузной дуге на катоде из хрома [51]. Н. Кајиока в своей работе разделяет идею о проявлении титановым катодом эффекта аномальной эмиссии электронов. Мощность электронного пучка, греющего катод, достигала 9 кВт, длина разрядного промежутка составляла 50 мм. Заземленная разрядная камера выступала коллектором ионного тока, также в ней располагался датчик для измерения скорости осаждения титанового покрытия.

К инициации разряда приводило прикладывание к аноду напряжения 20 В. Отмечено, что плазма становилась нестабильной при уменьшении напряжения анода ниже 20 В. Ток разряда изменялся в диапазоне 10-60 А. Исходя из представленных в работе фотографий, свечение плазмы в высокой степени равномерно. Спектральная диагностика оптического излучения плазмы разряда показала присутствие только атомов и однократно заряженных ионов титана.

Автором [88] исследовались осциллограммы тока, напряжения дуги, тока коллектора и тока электронного пучка. Анализ осциллограмм показал, что колебания параметров разряда вызваны в основном нестабильностью тока электронного пучка, и ток эмиссии электронной пушки может служить эффективным рычагом управления анодного тока и других параметров разряда. Рисунок 1.9 отражает связь напряжения разряда, тока эмиссии электронов, плотности тока на коллекторе и скорости осаждения на него. Аналогичные зависимости получены и при варьировании тока разряда. Основываясь на измерениях скорости осаждения титана, в работе была оценена скорость ионизации, необходимая для поддержания разряда, она составила $\sim 3 \times 10^{24}$ ионов/м³с. Также показано, что максимум скорости ионизации приходится на напряжение разряда 60 В, при напряжении 20 В она падает до 50% от максимального. Скорость ионизации аналогично снижается и при уменьшении разрядного тока. Поверхности, подверженные ионной имплантации из данного разряда, анализировались в работе [84]. Капли катодного материала на них не обнаружены.

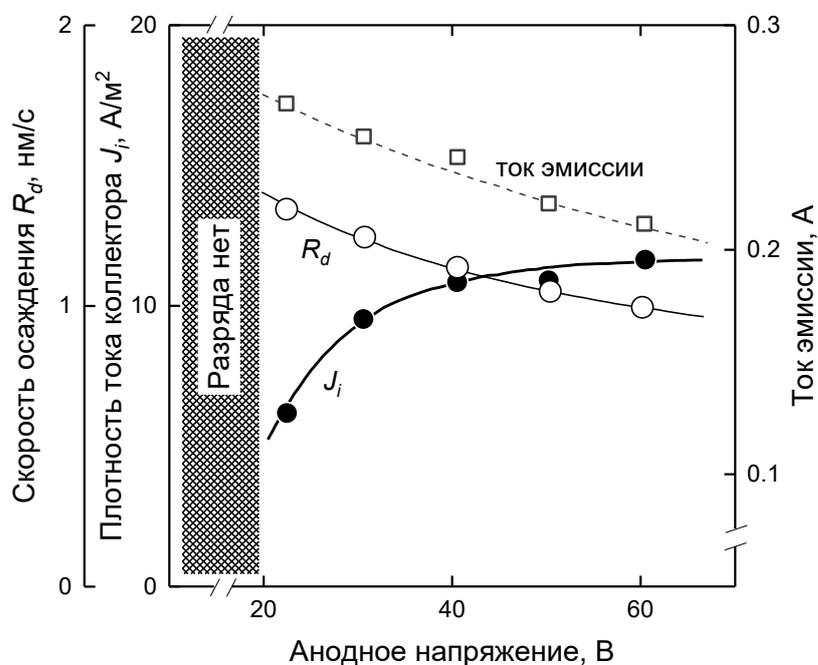


Рис. 1.9. Средние значения тока эмиссии, тока коллектора и скорости осаждения в зависимости от напряжения дуги [88].

Интерес к разрядной схеме с нагревом катода электронным пучком не ослабевает и в настоящее время. В работе [92] исследуется влияние формы анода и присутствия магнитного

поля на параметры образующейся плазмы. Катодом служит титан или хром в виде стержня диаметром 20 мм и длиной 150 мм, расположенный в водоохлаждаемом тигле. Электронный пучок мощностью до 30 кВт сканировал поверхность испаряемого материала и фокусировался в пятно размером 1 мм. Исследовалось 4 типа анода: 1 – вольфрамовая проволока диаметром 3 мм закрученная в кольцо диаметром 60 мм (площадь анода 10 см^2), 2 – кольцевой анод увеличенной площади 200 см^2 (позволило понизить напряжение разряда и уменьшить вероятность образования анодных пятен), 3 – тугоплавкая проволока накрученная в виде спирали с протекающим через нее электрическим током для генерации магнитного поля и увеличения степени ионизации плазмы, 4 – кольцевой анод большой площади с соленоидом. Для анализа плазмы использовались плоский зонд, многосеточный зонд (для анализа энергетического спектра ионов), коллектор ионов диаметром 25 см (для сбора полного ионного тока), а также масс-спектрометр.

Мощность электронного пучка существенно влияла на характеристику разряда в данной работе. Разряд переходил в дуговую фазу из слаботочной только при мощности пучка более 1,2 кВт, когда давление паров катода превышало величину $3 \times 10^{13} \text{ см}^{-3}$. Повышение мощности от 2 до 3,5 кВт в разряде на хромовом катоде понижало напряжение дуги в 1,5-2 раза на всей вольтамперной характеристике, также это приводило к ослабеванию шумов в спектре колебаний напряжения разряда. Вид вольтамперной характеристики для разрядов на хrome и титане был схожий. При увеличении тока от 1 до 20 А напряжение резко уменьшалось на 30-50 В до минимального значения, определяемого мощностью электронного пучка, а далее с ростом тока до 220 А медленно росло на несколько единиц вольт.

Результат сравнения плотностей ионного тока, зарегистрированного на коллекторе, в зависимости от формы анода показал, что наиболее эффективная конструкция – четвертая, где присутствует магнитное поле. Максимальная регистрируемая плотность тока в присутствии магнитного поля составляла 14 мА/см^2 при токе дуги 160 А, что до двух раз превышало ионный ток при других анодах. Зависимости электронной температуры и степени ионизации плазмы от величины магнитного поля представлены на рисунке 1.10. Средняя энергия ионов в дуге по данным авторов [92] составляла 6 эВ, повышение магнитного поля увеличивало энергию ионов до 11 эВ.

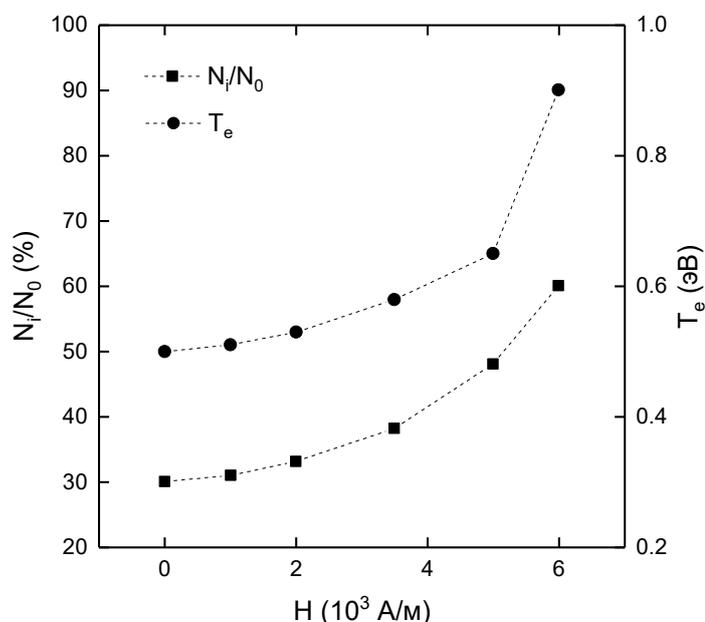


Рис. 1.10. Электронная температура (1) и степень ионизации потока плазмы (2) как функция величины магнитного поля [92].

В заключении автор [92] отмечает недостаток термоэмиссионного тока с катода и надеется, что полученные в работе данные позволят объяснить природу переноса заряда на катоде. Разряд является технологичным источником плазмы, успешно поддающимся управлению, что в перспективе позволяет эффективно использовать его для создания покрытий с высокой производительностью.

1.6 Диффузный вакуумный дуговой разряд с керамическим катодом

Данный раздел представляет результаты исследования диффузной вакуумной дуги на катодах из керамического материала - диоксида церия [93]. Использование схемы дополнительного разогрева катода позволило инициировать дугу на диэлектрическом материале, который при нормальных условиях был неспособен замкнуть ток разряда (ширина запрещенной зоны диоксид церия равна 3,41 эВ [94]). Кроме того известно, что в среде с малым парциальным давлением кислорода при повышении температуры (> 1 кК) за счет появления собственной проводимости и слабого восстановления до состава $\text{CeO}_{1.97-1.99}$ [95] оксид становится электропроводным.

Оксид церия можно отнести к веществам с величиной атом-электронного соотношения близким к единице. В экспериментах [93] измеренная работа выхода CeO_2 составляла 3,5 эВ, так

что при рабочей температуре катода 2,1-2,3 кК плотность тока термоэмиссии с его поверхности была сопоставима с плотностью тока дуги.

Оксидный катод приготавливался из порошка путем спекания в молибденовом тигле в вакууме при температуре 2 кК в течении 20 минут. Диагностика параметров плазмы проводилась при помощи одиночного, конденсационного и многосеточного зондов, расположенных в пространстве за анодом разряда. Также анализировался спектральный состав плазменного излучения внутри разрядного промежутка. Исследовался тепловой режим работы катода.

Измеренная ВАХ разряда в диапазоне токов 30-100 А имела линейно возрастающий вид с коэффициентом наклона ~ 0.03 Ом. Исследовалось влияние температуры катода на напряжение разряда при токе 60 А, при увеличении температуры от 2,18 до 2,3 кК напряжение дуги снизилось на 1 В. Основной варьируемой величиной, приводящей к изменению характеристик разряда, был ток дуги. Можно отметить, что при температурах катода менее 2,1 кК на аноде образовывались области контракции тока, что сопровождалось резким (до трех раз) увеличением напряжения разряда. По этой причине реализация самостоятельного режима работы разряда, то есть в отсутствие дополнительного нагрева катода, оказалась невозможной.

Данные спектральной диагностики плазмы показывали, что в ней присутствуют атомы церия и молибдена (материала катодного тигля), а также однозарядные ионы церия. Кроме того, зарегистрированы отдельные линии атомов кислорода, однозарядных ионов молибдена и двухзарядных ионов церия. Результаты измерения температуры электронов плазмы и энергии ионов приведены на рисунке 1.11.

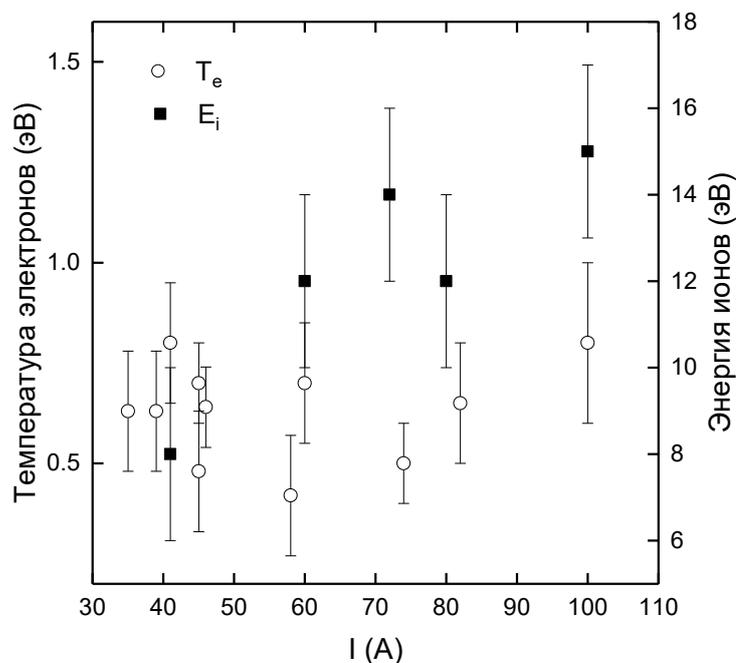


Рис. 1.11. Параметры плазменного потока диффузной вакуумной дуги на катоде из CeO_2 : температура электронов - T_e и наиболее вероятная энергия ионов [93].

Температура электронов оказалась независимой от тока разряда и не превышала 1 эВ. Наиболее вероятная энергия ионов с ростом тока дуги монотонно возрастает от 8 до 15 эВ, Средний заряд тяжелых частиц увеличивался с ростом тока дуги и при значениях выше 70 А стабилизировался на уровне 0.8–0.9e.

По данным проведенных экспериментов с оксидным катодом было выявлено, что во всех экспериментальных сериях плазма дуга дополнительно разогревала катод, и эффекта его термоэмиссионного охлаждения не наблюдалось, не смотря на относительно низкое значение работы выхода CeO_2 . Анализируя вид вольтамперной характеристики разряда и линейную зависимость вольтова эквивалента мощности, поступающей из плазмы в катод от тока разряда, авторы [93] предположили, что зона контакта тигля с катодом может иметь значительную величину омического сопротивления. Это «контактное» сопротивление может вызывать выделение дополнительного джоулева тепла, превосходящего эффект термоэмиссионного охлаждения.

1.7 Вакуумная дуга в магнитном поле

В данном разделе приведем краткий обзор исследований, затрагивавших вопрос влияния внешнего магнитного поля на ВД разряда. Аксиальное магнитное поле является наиболее изученной конфигурацией магнитного поля, в частности из-за того, что она нашла широкое применения в вакуумных прерывателях тока. Подробный обзор технологии AMF (axial magnetic field) в контексте вакуумных прерывателей тока представлен в работе [96]. Влияние однородного магнитного поля на плазму дугового разряда, прежде всего связано с замагничиванием электронной компоненты. Величина магнитного поля, при которой происходит замагничивание ионной компоненты намного больше, чем для электронной, при не слишком разных температурах T_i и T_e . По этой причине часто реализуется ситуация, в которой ионы могли бы свободно двигаться поперек магнитного поля, если бы не амбиполярная диффузия. Иными словами, возникающее при разделении ионной и электронной компонент плазмы радиальное электрическое поле ограничивает подвижность ионов поперек магнитного поля. Таким образом, присутствие аксиального магнитного поля меняет пространственное распределение плазменного столба сужая его к оси поля и повышая плотность тока, что приводит к изменению параметров разряда, в первую очередь напряжения.

Зависимость напряжения вакуумной дуги с холодным катодом достаточно хорошо изучена в широком диапазоне токов, магнитных полей, ширин катод-анодного зазора и материалов (металлов). Характерный график такой зависимости представлен на рисунке 1.12.

Видно, что зависимость $U(B)$ является немонотонной. Спадающая ветвь общепринято ассоциируется с уменьшением доли ионов, уходящих мимо электродов. Возрастающая ветвь ассоциируется со стягиванием плазменных струй от отдельных катодных пятен, т.к. локализация плазмы приводит к росту плотности ионной компоненты и, следовательно, к уменьшению проводимости. Описанный механизм влияния магнитного поля на напряжения вакуумного дугового разряда подтверждается проведенным на основе магнитогидродинамических моделей численными расчетами [97].

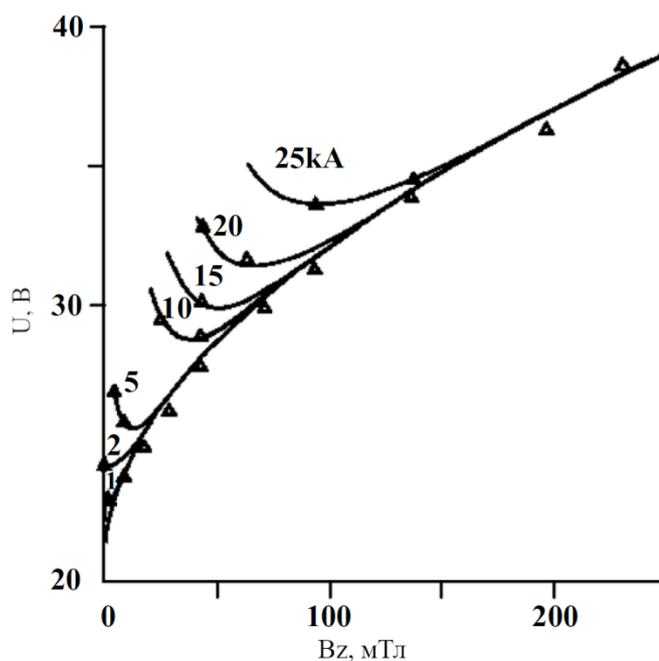


Рис. 1.12. Типичная зависимость U от B для металлического катода [96].

С другой стороны, магнитное поле также влияет и на движение катодных пятен, что тоже меняет структуру разряда. В работе [98] высказывается гипотеза, объясняющая спадающую ветвь $U(B)$ удержанием магнитным полем катодных пятен в центральной части разряда, в этом контексте особенно важна форма поверхности электродов. Как уже отмечалось выше, катодные пятна в вакуумных дугах с холодными катодами имеют ключевую роль, обеспечивая замыкание тока разряда. Влияние магнитного поля непосредственно на движение пятен, в результате, является еще одним механизмом изменения параметров разряда. Помимо напряжения в этом случае очевидна связь также со скоростью эрозии электродов и стабильностью горения. Которые особенно важны в задачах осаждения пленок. На вопросах связанных с движением катодных пятен во внешнем магнитном поле фокусируются, например, следующие работы [99] [100], хотя список работ совершенно не исчерпывается приведенными. Особенно интересным является феномен ретроградного движения пятен, он затрагивается в работе [45]. Отметим, что в случае вакуумного дугового разряда с горячим катодом вопрос о движении пятен кажется второстепенным, но только в случае реализации диффузного типа дуги.

Влияние аксиального магнитного поля на плазменный столб исследуется также уже длительное время. В работе [101] были измерены радиальные распределения интенсивности излучения плазмы отдельного катодного пятна для нескольких величин магнитного поля и количественно показано уменьшение диаметра струи. Было обнаружено, что струя может иметь более сложную структуру: центральная часть, состоящая из плазмы с высокой степенью ионизации, окружена «шубой» слабоионизованной плазмы, диаметр которой не зависит от величины магнитного поля [102]. Помимо влияния поля на структуру плазменных струй несколько работ посвящено вопросу влияния магнитного поля на их направление [103].

Важную роль в вакуумном дуговом разряде также играет процесс формирования вторичной плазмы вблизи анода. Высокоэнергичные ионы, бомбардируя поверхность анода, приводят к вторичной эмиссии нейтральных атомов, которые ионизируются в непосредственной близости от поверхности анода. С этой точки зрения анод играет активную роль в процессе горения разряда. Более того, возможен сильный разогрев анода в результате начинается испарение и электронная эмиссия с поверхности анода. Наличие магнитного поля приводит к росту плотности тока, а, следовательно, и к росту плотности приносимой в анод мощности, локализуя области нагрева анода. Это может приводить к сильному локальному разогреву, т.е. еще более активному формированию вторичной плазмы. Таким образом, присутствие магнитного поля также влияет и на роль анода. Вопросы, связанные с анодом в вакуумных дугах, затрагивались в работах [104] [105] [106].

Множество экспериментальных работ так посвящено исследованию влияния магнитного поля на параметры плазмы. К примеру, в работе [73] проводились измерения энергии выходящих в анодное пространство ионов в вакуумной дуге с полым анодом. Авторы продемонстрировали рост энергии при увеличении величины аксиального магнитного поля, более того они исследовали влияние структуры магнитного поля на энергию ионов. В частности, было показано, что энергия ионов может и уменьшаться при увеличении магнитного поля, в случае если поле неоднородно и возрастает от катода к аноду. Таким образом, показана возможность контролировать величину энергии ионов. Влияние распределения аксиально магнитного поля исследовалось и в работе [107], в которой при помощи высокоскоростной камеры анализировалась однородность горения вакуумной дуги, с целью поиска оптимальной конфигурации поля для вакуумных прерывателей тока.

В заключении данного раздела проведем обобщение написанного выше: влияние магнитного поля на ВД разряд на первый взгляд может выглядеть очевидным, но в действительности оно затрагивает сразу ряд физических процессов в разряде, которые взаимосвязаны. В результате задача становится более комплексной и результаты должны интерпретироваться при рассмотрении всей совокупности перечисленных выше аспектов.

1.8. Выводы к первой главе

На основе анализа истории изучения лабораторной плазмы, делается вывод о важности исследований новых методов генерации плазмы, т.к. при этом выявлялись новые физические закономерности горения газового разряда и решались новые технические задачи. Рассмотрены полученные в нескольких прикладных направлениях физики плазмы результаты, послужившие основой для создания ряда технологий. Один из примеров — это технология переработки ОЯТ, которая в будущем может стать осуществленной плазменной технологией. Острота проблемы перехода к замкнутому ядерному топливному циклу и недостаточности производительности существующих методов переработки ОЯТ, актуализирует необходимость развития новых подходов к обращению с ОЯТ. Для реализации метода плазменной сепарации ОЯТ требуется создать производительный источник плазмы сепарируемых веществ, генерирующий плазму с преобладающим содержанием однократных ионов. ДВД разряд может решить данную задачу. Данный разряд с подогреваемыми металлическими катодами, как термоэмиссионными, так и не термоэмиссионными, достаточно подробно исследован. На керамическом катоде исследование данного разряда только началось. Тем не менее, ОЯТ представляет собой сложную смесь диоксида урана и металлических продуктов распада, поэтому необходимо исследование возможности переводить в плазменное состояние смесевые катоды. Кроме того, недостаточно раскрыт вопрос стационарности горения разряда на керамическом катоде и реализующегося ионного состава плазмы. В заключении главы рассмотрены аспекты, касающиеся вакуумных дуговых разрядов во внешнем магнитном поле. Хорошо известно, каким образом величина магнитного поля влияет на напряжение разряда, степень ионизации, плотность плазмы, но ДВД разряд прежде не исследовался в магнитном поле и вопрос о принципиальной реализуемости данного типа катодной привязки остаётся открытым. Раскрытию указанных вопросов и посвящена данная работа, продолжающая цикл начатых ранее исследований вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом.

Глава 2

Времяпролетный масс-спектрометр для исследования ионного состава непрерывного потока плазмы тяжелых металлов и их оксидов

Данная глава посвящена методам времяпролетной масс-спектрометрии (ВМС). В начале, кратко приводится общая концепция ВМС, перечислены физические факторы, приводящие к ограничению разрешающей способности данного метода и способы его повышения (раздел 2.1). Далее в разделе 2.2 рассматриваются работы, в которых ВМС применялись для исследования плазменных систем, и обосновывается целесообразность выбранной схемы технической реализации масс-спектрометра (МС), которая подробно описывается в разделе 2.3. Раздел 2.4 посвящен апробации созданного МС, его аппаратной функции и разрешающей способности.

2.1. Факторы, определяющие разрешающую способность времяпролетного масс-спектрометра

Использование времяпролетной техники масс-спектрометрии обосновано относительно простой реализацией данного подхода. Концептуально, времяпролетный масс-анализатор состоит из двух областей – области экстракции s и дрейфовой области D . В первой формируется моноэнергетический пучок ионов. Вторая область служит для пространственного разделения пучков ионов разной массы. Фактически же, масс-анализатор состоит из ряда систем: экстракции, фокусировки пучка, детектирования ионов и системы аналогового усиления зарегистрированного сигнала.

Время прохождения моноэнергетическим пучком ионов дрейфовой области равно:

$$t = D \left(\frac{m}{2eU} \right)^{1/2} \sqrt{\frac{M}{q}}, \quad (7)$$

где: M – относительная атомная масса элемента, q – степень ионизации иона, U – напряженность поля в области экстракции, e – элементарный заряд, m – масса протона, D – длина пути пучка ионов в дрейфовой области.

Прямая зависимость времени пролета от атомного номера определяет возможность отдельно регистрировать элементы различной массы, т.е. регистрировать масс-спектр. В различных времяпролетных МС s -порядка 1 см, D – порядка 1 м, энергия ионов варьируется от сотен эВ до нескольких десятков кэВ.

Один из важнейших параметров МС – разрешающая способность, характеризует возможность регистрировать отдельно химические элементы с близкой массой. Количественным выражением данного параметра является отношение $R = \frac{m}{\Delta m}$, где: m – масса элемента, Δm – разница масс, при которой элементы разрешаются [108]. Критерием разрешения массовых пиков с разницей Δm является может являться величина перемычки между ними. Значение этой величины задается исходя из условий и целей исследования. В частности, для количественного исследования масс-спектра требуется маленькая величина перемычки порядка десятых долей от амплитуды пиков, в то время как для качественного анализа состава достаточно лишь факта наличия пиков, следовательно, достаточно куда большей величины перемычки.

Разрешающая способность напрямую зависит от ширины массовых пиков, т.е. от времени τ между прилетом на детектор “первого” и “последнего” иона в пучке конкретной массы. Поэтому вся история развития времяпролетной масс-спектрометрии – это последовательное уменьшение этого времени.

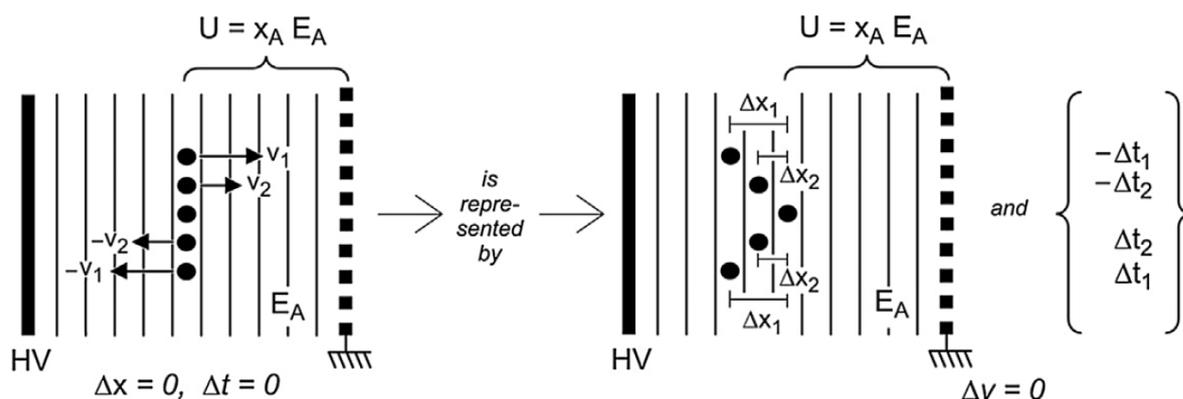


Рис. 2.1. Иллюстрация механизмов уширения массовых-пиков [109]: разброса по скоростям ионов, разброса по стартовым координатам и времени старта. E_A – напряженность электрического поля, v_i – скорости ионов.

Для описания механизмов уширения рассмотрим иллюстрацию движения ионов в ускоряющем зазоре [110] [109] (рис 2.1). Во-первых, если ускоряющий зазор полностью заполнен ионами в момент времени, предшествующий ускоряющему импульсу, то их стартовые позиции отличаются по координате вдоль оси МС. В следствии этого различные ионы проходят различную разность потенциалов в ускоряющем зазоре и приобретают различающиеся энергии. Время прилета ионов 1 и 2 будет отличаться. Во-вторых, к аналогичному эффекту приводит изначальный разброс ионов по энергии. В-третьих, если МС предназначен для исследования нейтрального пара, то в нем осуществляется его ионизация. Моменты отдельных актов

ионизации могут существенно отличаться по времени в зависимости от способа ионизации. Это непосредственно увеличивает величину τ .

Для подавления перечисленных механизмов разработано множество способов. Прежде всего совершенствуются методы ионизации газа, например, при помощи интенсивного лазерного излучения возможно осуществить ионизацию тонкого слоя газа ($dl < s$) за время порядка 10 нс, одновременно разрешая как проблему разброса стартовых точек, так и разброса моментов ионизации. Аналогичные преимущества может дать использование ионизации с поверхности материала. Широко применяемым методом повышения разрешающей способности является метод временной задержки, предложенный в работе [111]. Авторы предложили внести задержку по времени между моментами ионизации электронным пучком и подачей ускоряющего импульса. Сразу после ионизации в зоне экстракции ионы имеют некоторое распределение по скоростям. Для описания идеи метода достаточно факта, что есть более быстрые и более медленные ионы. За время задержки они пройдут разное расстояние в результате чего быстрые окажутся ближе к коллектору, чем медленные. После подачи импульса ионы пройдут дистанции x в зоне экстракции и приобретут энергию xqE . Но у медленных x будет больше, чем у быстрых, и они приобретут большую энергию. Это и позволяет скомпенсировать изначальную разницу в энергиях ионов и подобрать такую задержку и потенциалы, при которых на детекторе будет минимальное τ . Тем не менее при изучении свойств плазмы нет необходимости в дополнительной ионизации и данные подходы неприменимы.

Разброс ионов по энергии, как изначальный, так и возникающей в после ускорения, можно устранить методом фокусировки по энергии [112]. Для этого на пути пучка располагается система отражающих электродов, при этом на первый на пути пучка электрод подается потенциал U_0 , соответствующий ускоряющему потенциалу, а на последний $U_0 + \Delta E$, где ΔE – предполагаемая разность энергии ионов в пучке. Таким образом, ионы с минимальной энергией отразятся от первого электрода, а ионы с большей от последнего. В результате чего последние пройдут большой путь. Подбирая потенциалы на электродах и расстояние между ними можно обеспечить ситуацию, в которой все частицы придут на коллектор ионов одновременно.

Альтернативный способ решить проблему с распределением ионов по энергии – ортогональная экстракция [113]. Ускорение ионов осуществляется в направлении перпендикулярном направлению начальной скорости ионов. Данный подход очень эффективен и позволяет в том числе исследовать масс-спектры плазмы. Единственным его недостатком является невозможность применения при наличии внешнего магнитного поля.

В данной работе не будет подробно рассматриваться направление развития времяпролетной техники для диагностики тяжелых химических соединений, проблем связанных с фрагментацией соединений и методов их решения, т.к. это слишком сильно уходит в сторону от целей работы. Отметим лишь, что данное направление хорошо развито [114].

2.2. Времяпролетная масс-спектрометрия плазмы

Рассмотрим ряд работ, в которых применялись методы ВМС для диагностики плазменных систем. В работе [115] предлагается конструкция времяпролетного МС, разработанного для исследования состава плазмы высокочастотного емкостного разряда. Данный источник плазмы используется для нанесения напылений (plasma-enhanced chemical vapor deposition), как правило на основе кремния, для задач микроэлектроники. Повышение разрешения спектрометра авторы осуществляли путем применения одновременно несколько из упомянутых выше методов. Для компенсации первоначального разброса стартовых позиций ионов в ускоряющем промежутке применялась схема с рефлекторами. Общая длина пути дрейфа ионов близка к 1 м. Длина пролетной базы при этом составляла 0,6 м, что дает возможность считать МС относительно компактным. Ширина ускоряющего зазора составляла 25 мм, такая величина становится возможной именно благодаря рефлекторам. Для минимизации начального разброса ионов по скоростям применялась ортогональная схема экстракции пучка ионов. Кроме того отмечается, что было уделено внимание созданию однородного электрического поля, для предотвращения рассеяния пучка ионов. Главным механизмом уширения массового пика при такой конструкции масс-спектрометра стали флуктуации электрических полей в рефлекторе и системе ускоряющих электродов. В результате авторам удалось достичь высокой разрешающей способности масс-спектрометра, достигающей 2000. Данный спектрометр успешно применялся для диагностики как положительных, так и отрицательных ионов.

В работе [116] проводилась диагностика состава плазмы геликонного разряда в газе CF_4 . Магнитное поле было до 1000 Гс, частота высокочастотного поля – 13,56 МГц, давление плазмообразующего газа 1,7-10,0 мТорр, плотность электронов 10^{11} - 10^{13} см^{-3} . Похожие исследования представлены в работе [117], где осуществлялась масс-спектроскопическая диагностика импульсного геликонного разряда в кислороде. Давление плазмообразующего газа 2,5-7,0 мТорр, плотность электронов 10^{11} - 10^{13} см^{-3} . Магнитное поле 1000 Гс. Необходимое разрешение масс-спектрометра достигалось за счет подачи импульса напряжения к отклоняющему электроду. Импульс был синхронизирован с частотой импульсной генерации разряда. Система экстракции состояла из нескольких электродов. Ускоряющее напряжение было

величиной до 2 кВ, пролетная база составляла 124 см. Для фокусировки пучка использовались линзы энзеля. Коллектором ионов служил цилиндр Фарадея. В результате были получены масс-спектры как положительных ионов O^+ и O_2^+ , так и отрицательных ионов O^- и O_2^- .

Научной группой из Томского Государственного Университета был разработан времяпролетный МС для диагностики плазменных систем. Конструкция которого подробно описана в работе [118]. Авторы предложили систему, в которой ускорение происходит в непрерывном режиме, а формирование пучка осуществляется за счет отклоняющего электрода. Длительность отклоняющего импульса примерно 150 нс. Отклонение осуществляется под малым углом к направлению движения непрерывного потока (примерно 3 градуса). Величина ускоряющего напряжения равна 20 кВ, а отклоняющего 1 кВ. Подобная конструкция, обеспечивающая ускорение в непрерывном режиме, сразу решает несколько проблем, возникающих в импульсном режиме. Малость длительности отклоняющего импульса позволяет получить высокое разрешение, продемонстрированное в работе (разрешались пики H^+ и H_2^+), но приводит к необходимости использовать электронный умножитель для детектирования потока ионов. Длина пролетной базы составляет 1 м, при относительно большом для масс-спектрометров диаметре. В следствии чего данный масс-спектрометр является стационарным.

Двух-полевая модель системы экстракции пучка ионов Willey применялась в работе [119] для диагностики плазмы, генерируемой с поверхности исследуемого образца излучением лазера длительностью 8 нс. В частности, анализировалась плазма гадолия. Ширина массового пика ионов Gd^+ равна приблизительно 600 нс при времени пролета около 19 мкс.

Обобщая представленные данные, можно сказать, что времяпролетная масс-спектроскопия успешно применяется для диагностики плазменных систем как импульсных, так и непрерывных. Тем не менее для создания масс-спектрометра для диагностики непрерывного потока плазмы с высоким разрешением требуется либо использования модификаций таких как – рефлекторы, либо ортогональная экстракция ионов. Подобные модификации невозможны при наличии внешнего однородного магнитного поля и в целом значительно усложняют конструкцию масс-спектрометра, что нивелирует изначальное преимущество времяпролетных методов – простоту реализации. Отметим также, что специфика конкретных научных задач часто приводит к необходимости вносить заметную модификации даже в коммерческих времяпролетных МС, следствие чего являет длительный срок изготовления и высокая стоимость подобных приборов.

Цель данной работы состоит, в частности, в исследовании ионного состава плазмы диффузной вакуумной дуги на катодах из гадолия, диоксида церия и мультикомпонентных

катодах. Для этой цели достаточно небольшого разрешения $R \approx 10$ т.к. в составе плазмы нет предположительно химических элементов с разницей масс меньше 16. Тем не менее времяпролетный масс-анализатор, разрабатываемый для такой цели, должен функционировать в условиях плазменного разряда и постоянного осаждения тяжелых металлов и их оксидов (являющимися диэлектриками), т.е. электроды будут требовать частой замены, а значит обслуживание должно быть относительно простым. В противном случае активная исследовательская деятельность будет постоянно останавливаться. Более того, необходимым требованием является потенциальная возможность его применения при наличии внешнего аксиального магнитного поля. В силу подобных условий многие разработанные методики повышения разрешающей способности времяпролетных МС, неприменимы, и требуется поиск новых решений.

2.3. Времяпролетный масс-спектрометр для диагностики ионного состава непрерывного потока плазмы

Приведем подробное описание созданного масс-спектрометра (рисунок 2.2) и его отличий от классических схем, обусловленных целями, сформулированными в предыдущем разделе, а также спецификой объекта исследования. Времяпролетный МС создавался для диагностики компонентного состава непрерывного потока плазмы вакуумного дугового разряда. Плазма разряда генерируется между подогреваемым расходуемым катодом, находящемся в теплоизолированном тугоплавком тигле, и анодом с отверстием для выхода плазменного потока. В качестве катодного материала, являющегося источником плазмообразующей среды, используются чистые металлы и оксиды металлов, плазма которых широко применяется и потенциально применима для различных технологических задач. Среди них Ti, Ag, Cr, Gd, Pb, U, CeO₂, TiO₂, а также другие редкоземельные элементы и их оксиды. Концентрация плазменного потока на выходе из источника находится на уровне 10^{11} - 10^{12} см⁻³, средняя энергия ионов в потоке составляет порядка 10 эВ, а на разряд может быть наложено магнитное поле величиной до 2 кГс. Данные условия характерны для источников плазмы, применяемых при разработке технологии плазменной сепарации ОЯТ.



Рис. 2.2. Фотография созданного времяпролетного масс-спектрометра.

Классическая двух-полевая система ускорения ионов во времяпролетном масс-спектрометре [111] подразумевает наличие ионизатора и двух областей пространства, в которых создается ускоряющее электрическое поле разной величины. В первой области, называемой источником, ионы рождаются и выталкиваются в сторону второй области. Скорость иона на выходе из области источника определяется его координатой старта и начальной скоростью. Попав во вторую область все ионы доускоряются в направлении детектора и дальше движутся в зоне без полей. Двух-полевой подход позволяет фокусировать частицы, рожденные в разных областях источника, на детекторе путем варьирования величин электрических полей. После «пространственной» фокусировки массовое разрешение системы остается во многом зависящим от разброса начальных скоростей ионов в источнике.

Преимуществом двух-полевой модели над одно-полевой является возможность влиять на параметры пучка ионов варьированием нескольких параметров. Этими параметрами являются: ширина области S , ширина области d , разность потенциалов U_s и амплитуда ускоряющего импульса U_0 . Это позволяет добиться условий максимизации разрешения масс анализатора. Как известно, ион, изначально находившийся в ускоряющем зазоре ближе к коллектору, приобретет меньшую энергию, чем стоящий дальше, т.к. пройдет меньшую разность потенциалов. Следовательно, будет отличаться время прилета этих двух ионов. Это приводит к увеличению ширины регистрируемого массового пика. Время прилета ионов на коллектор, можно выразить следующей формулой [111]:

$$T = \left(\frac{m}{2(qdE_d + qs'E_s)} \right)^{1/2} \left(2s' \sqrt{1 + \frac{dE_d}{s'E_s}} + \frac{2\sqrt{1 + \frac{dE_d}{s'E_s}}}{\sqrt{1 + \frac{dE_d}{s'E_s} + 1}} d + D \right), \quad (8)$$

где: m – масса иона, q – заряд иона, E_s, E_d – напряженность электрического поля в областях s и d соответственно, s' – расстояние, которое проходит ион в области s , d – ширина области d , D – длина пролетной базы масс-анализатора.

Величина $\frac{dE_d}{s'E_s}$ представляет собой отношение энергий, приобретенных ускоряющимся ионом при прохождении областей s и d соответственно.

С использованием формулы (8) можно определить длительность прилета пучка на коллектор τ рассчитав время для иона со стартовой позицией $s'=0$ и $s'=s$. Минимизация τ по параметрам $\frac{U_d}{U_s} = \frac{dE_d}{s'E_s}$, s и d позволяет определить оптимальные с точки зрения разрешения масс-анализатора значения параметров. При выборе подобных параметров обеспечиваются условия, когда ионы, имеющие большую энергию «догоняют» медленные ионы ровно на коллекторе.

При непрерывном потоке плазмы на входе МС, описанная классическая система ускорения не может быть использована, так как источник ионов находится снаружи прибора, и перед фазой ускорения частицы заполняют обе области двухполевой системы. В этом случае предлагается использовать многоэлектродную схему для локализации ионов внутри системы ускорения. На рисунке 2.3 представлена схема распределения полей в системе ускорения с пятью электродами для достижения цели локализации частиц. Формирование и ускорение пучка ионов осуществлялось системой из пяти электродов, которая имеет два состояния - фаза ускорения и фаза накопления ионов. Ускорение осуществлялось подачей положительного импульса высокого напряжения амплитудой до 1400 В на второй и третий электроды (нумерация указана на рисунке 2.3). Соотношение между амплитудами импульсов на электродах 2 и 3 задается делителем напряжения. Четвертый электрод был под постоянным положительным потенциалом. Первый электрод под потенциалом земли. Таким образом, ускоряющее электрическое поле создавалось между первым и четвертым электродами, пространство между ними будем называть ускоряющим промежутком. Подобная схема работы системы ускоряющих электродов позволяет проводить исследование непрерывного потока плазмы поступающего на вход МС.

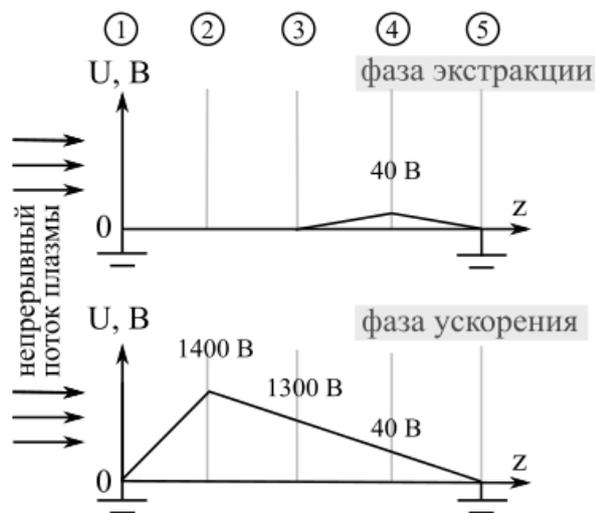


Рис. 2.3. Система экстракции времяпролетного масс-анализатора. До подачи ускоряющего импульса сверху. Во время подачи ускоряющего импульса снизу.

Длительность ускоряющего импульса составляла 1,0-2,0 мкс, при этом передний фронт импульса – 40 нс (рисунок 2.4). За время длительности импульса ионы заведомо успевали пролететь ускоряющий промежуток. Отметим, что система ускорения будет выполнять свою функцию только в случае, если между электродами ускоряющей системы не будет образовываться объемный заряд [120]. По оценкам радиус экранирования объемным зарядом равный 1 мм соответствует концентрации частиц в спектрометре на уровне 10^{10} см^{-3} . Это условие означает, что плазма на входе в спектрометр может нуждаться в дополнительном разрежении. В описываемом приборе эту задачу выполняет электрод 1 и установленная на нем сетка. Количество и размер сеток можно варьировать для ослабления потока и обеспечения работы времяпролетного МС при больших концентрациях.

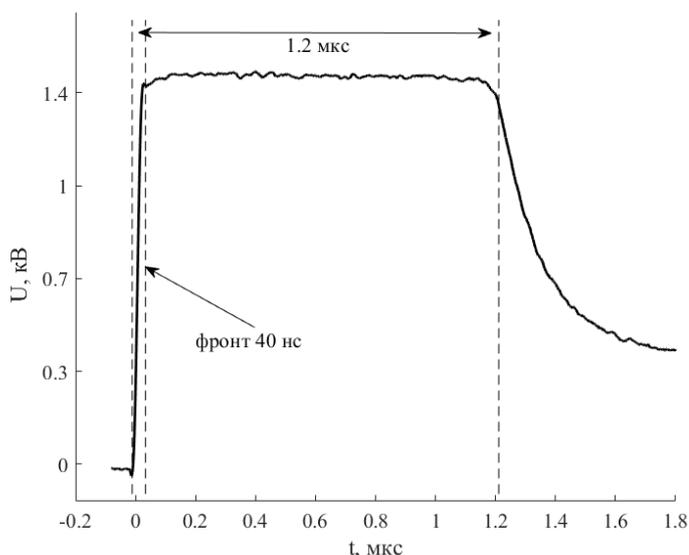


Рис. 2.4. Форма ускоряющего импульса

Расстояния между электродами, следующие: 2-4-4-2 мм начиная от 1-го электрода (рисунок 2.5). Диаметр отверстий в электродах равнялся 1 см. Однородность электрического поля обеспечивалась металлическими сетками на отверстиях. На пятом электроде устанавливалась «мелкая» сетка с линейным размером ячейки ~ 60 мкм. Внешняя сетка обеспечивает разделение ионной и электронной компоненты плазмы, поэтому размер ячейки должен быть меньше радиуса Дебая. С другой стороны сетки с маленькой ячейкой характеризуются маленьким коэффициентом пропускания. Поэтому на остальных электродах устанавливалась «крупная» сетка с линейным размером ячейки ~ 1 мм. Дополнительно в целях увеличения коэффициента пропускания сетки были отцентрированы.

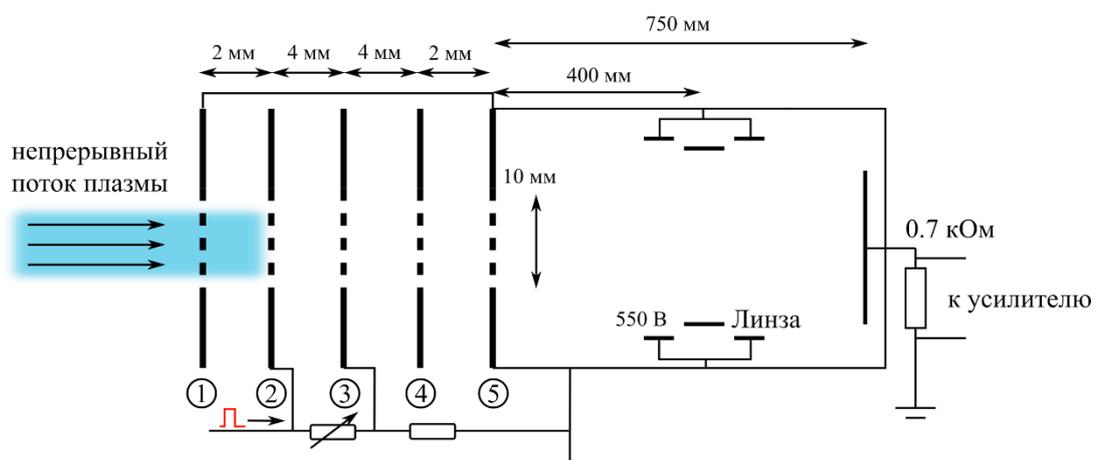


Рис. 2.5. Схема масс-спектрометра.

В качестве второй подсистемы можно выделить систему фокусировки пучка. Для этого было изготовлено несколько одиночных электрооптических линз [121]. В различных конфигурациях масс-анализатора применялось от одной до трех линз одновременно. Линза представляла собой три цилиндрических электрода расположенных последовательно друг за другом в трубе масс-анализатора. Центральный электрод находился под положительным потенциалом $U_{л}=400-800$ В. Крайние электроды находились под потенциалом земли. Потенциал линзы может быть подстроен в эксперименте. В описанных далее опытах, линза располагалась на расстоянии 400 мм от системы ускорения, при величине ускоряющего импульса 1,40 кВ наибольший сигнал на детекторе получался при потенциале линзы 0,55 кВ. В этих условиях время пролета однократно заряженного иона массой 160 а.е.м. через зону дрейфа составляет около 20 мкс.

Детектирование потока ионов, приходящего на коллектор, осуществлялось измерением напряжения на нагрузочном резисторе. Номинал резистора подбирается из соображений максимизации регистрируемого сигнала при минимизации постоянной времени разрядки

паразитных емкостей. Ток, текущий по резистору во время прилета пучка ионов, является полезным сигналом МС. Сигнал долетающих до детектора ионов с нагрузочного резистора передается на высокочастотный предусилитель. Мы использовали двухкаскадный self-made предусилитель, построенный на базе операционных усилителей AD8055 с полосой пропускания 300 МГц. Коэффициент усиления составлял 270. Сигнал с предусилителя передается на цифровой осциллограф с полосой пропускания 100 МГц, который записывает осциллограммы с периодом 13 Гц. Каждая осциллограмма является массовым спектром ионов исследуемого потока плазмы. Накопление осциллограмм позволяет проводить усреднение массовых спектров и существенно увеличивать соотношение сигнал/шум. Усреднение по сотням осциллограмм позволяет выявить импульсы компонентов состава, амплитуда которых сравнима или даже меньше значений шума.

В качестве выходных данных МС мы ставили целью определять абсолютное содержание долей ионных компонент плазмы. Для получения таких данных предлагается использование процедуры, состоящей из двух основных шагов.

Первое – определение аппаратной функции прибора. Это предлагается делать путем апробации прибора на плазменном потоке, содержащем ионы только одного вещества с известной кратностью заряда. Эксперимент даст возможность зарегистрировать один ионный пик и определить его характерную форму. Одновременно с этим необходимо измерить концентрацию ионов плазмы у входного отверстия ВМС. Тогда появляется возможность соотнести площадь под сигналом зарегистрированного ионного пика с концентрацией ионов, попадающих внутрь ВМС. То есть получить коэффициент пересчета сигнала ВМС к концентрации ионной компоненты плазмы.

Второе – использование полученной характерной формы аппаратной функции ВМС для расшифровки ионного спектра многокомпонентной плазмы. Это может быть достигнуто путем организации итерационного процесса, в котором экспериментальный спектр многокомпонентной плазмы будет аппроксимироваться набором сдвинутых и пропорционально увеличенных аппаратных функций. Далее воспользоваться вычисленным коэффициентом пересчета для восстановления долей концентраций компонент.

2.4. Апробация времяпролетного МС в плазме диффузного вакуумного-дугового разряда

Тестирование разрешающей способности и чувствительности МС производилось на плазме диффузного вакуумного дугового разряда с горячим катодом. Для определения чувствительности датчика ионов прибора проводились эксперименты на катоде из металлического гадолиния Gd (157 а.е.м.) закладываемого в молибденовый тигель. Для демонстрации разрешающей способности прибора использовался катод из диоксида церия CeO_2 (176 а.е.м.) с вольфрамовым тиглем (184 а.е.м.). Схема эксперимента представлена на рисунке 2.6. Катод дугового разряда находился в тигле, подогреваемом при помощи электронной пушки. Анодом служила молибденовая пластина с центральным отверстием. Диаметры отверстий в тигле и аноде совпадали и составляли 14 мм. Катод-анодное расстояние было 30 мм. Дуговой разряд генерировал вертикальный непрерывный направленный поток плазмы ионизованных частиц катодного материала. Входное отверстие спектрометра располагалось на расстоянии порядка 300 мм от катода разряда. Концентрация плазмы на входе в спектрометр составляла порядка 10^{10} см^{-3} . Потенциал плазмы в области спектрометра составлял 5-10 В. В энергетическом спектре ионов, по данным предыдущих измерений параметров плазмы методом задерживающего потенциала, преобладали частицы с энергией 10 эВ, ширина спектра на полувысоте составляла ~ 3 эВ.

Предварительно движение ионов внутри спектрометра моделировалось численно путем решения уравнения движения ионов в бесстолкновительном приближении при заданных начальных координатах и скоростях частиц, в заданном электрическом поле. Моделирование позволяло подбирать параметры различных систем прибора и прогнозировать формы массовых спектров в зависимости от масс частиц на входе, их энергетического спектра, а также от соотношения величин электрических полей в зазорах системы ускорения.

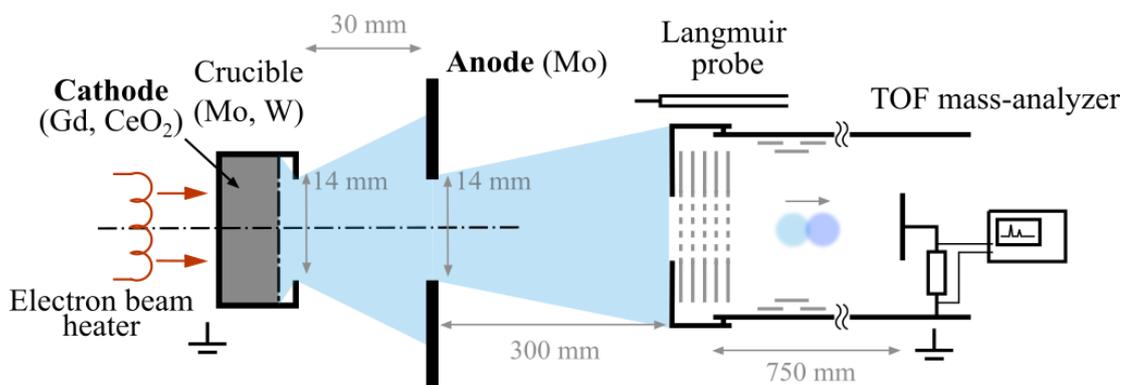


Рис. 2.6. Схема тестирования ВМС в вакуумной дуге с горячим катодом

Для реализации в ВМС возможности измерения количественного содержания ионов в плазменном потоке производилась калибровка датчика ионов. Для этого производилось измерение осциллограмм сигналов ионов Gd, прилетающих на датчик ВМС, с одновременным измерением концентрации ионов плазмы на входе в ВМС. Концентрация измерялась методом зонда Ленгмюра, ВАХ обрабатывалась методом Чена [122]. Возможность такой калибровки обеспечена тем, что в диффузной вакуумной дуге с гадолиниевым катодом возможно создать плазму, в которой присутствуют ионы только одной кратности ионизации.

На рисунке 2.7 приведен сигнал ионов плазмы Gd, представленный только частицами Gd^+ . На рисунке представлен как одиночный сигнал ионов, так и результат усреднения 300 последовательно зарегистрированных осциллограмм сигналов, регистрируемых детектором. Время прилета частиц на детектор составляет 20,25 мкс, а ширина пика на полувысоте равна 0,85 мкс. Таким образом, разрешающую способность прибора можно оценить как ≈ 24 . Ток разряда составлял 65 А, напряжение 4,7 В. Концентрация ионов плазмы на входе ВМС составляла $9.7 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$. Эти данные позволяют сопоставить площадь под графиком спектра с концентрацией ионов и получить коэффициент пересчета сигнала ВМС к концентрации той или иной компоненты плазмы, обозначим его как η . В приведенном случае, коэффициент $\eta \approx 3 \times 10^7 \text{ см}^{-3} \text{ мВ}^{-1} \text{ мкс}^{-1}$. Относительная погрешность приведенного метода определения содержания ионов в плазме по оценкам составляет порядка 10%. Она определяется точностью измеренной концентрации ионов, а также величиной шумовой компоненты в регистрируемых осциллограммах.

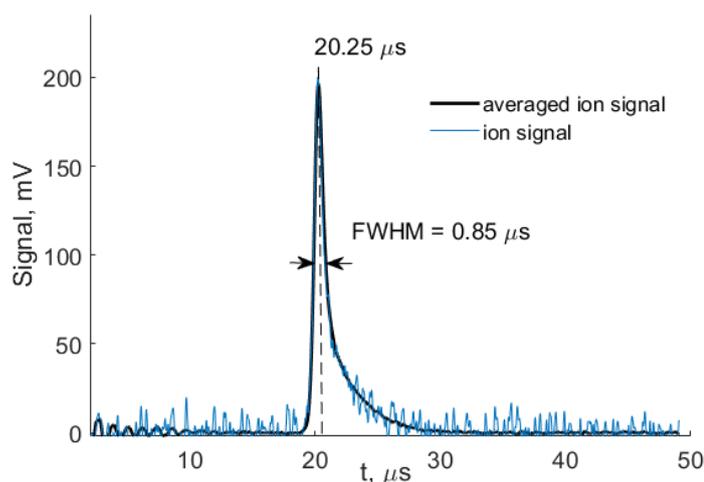


Рис. 2.7. Зарегистрированный сигнал ионов Gd^+ и усредненные 300 последовательных сигналов. Ток разряда 64 А, напряжение 4.6 В.

Отметим, что содержание изотопов в природном гадолинии имеет широкий массовый спектр: ^{155}Gd — 14,80%, ^{156}Gd – 20,47 %, ^{157}Gd - 15,65 %, ^{158}Gd – 24,84%, ^{160}Gd – 21,86 %) [123].

Изотопы могут уширять массовый пик, однако для определения чувствительности датчика ионов и аппаратной функции, изотопный вклад незначителен.

На рисунке 2.8 представлен масс-спектр ионов плазмы дугового разряда с катодом из диоксида церия, находившегося в вольфрамовом тигле. На оси абсцисс рисунка 2.8 указана масса прилетающих частиц, она пересчитана с учетом того, что время прилета иона пропорционально корню из его массы. На рисунке приведен одиночный спектр, а также результат усреднения 300 последовательно зарегистрированных спектров. Усреднение позволило выявить массовые пики, скрытые за шумовой составляющей. Это видно на примере проявившегося сигнала иона Ce^{++} . Данные рисунка 2.8 демонстрируют эффект массового разделения ионов Ce^+ , Ce^{++} , CeO^+ и W^+ по времени прилета в описываемом приборе. Также на рисунке представлен и смоделированный спектр для частиц Ce^+ , Ce^{++} , CeO^+ и W^+ . Пики модельного спектра заметно уже экспериментальных, в силу того, что расчет не учитывает некоторых физических эффектов, влияющих на ширину пиков, таких как рассеяние ионов на сетках и неоднородность генерируемых электрических полей, шумов прикладываемых напряжений, паразитных емкостей как в измерительной цепи, так и в цепи передающий ускоряющий импульс, формой ускоряющего импульса, не являющейся строго прямоугольной. Тем не менее, расчет и калибровка МС на плазме Gd помогает идентифицировать пики ионов в этом эксперименте.

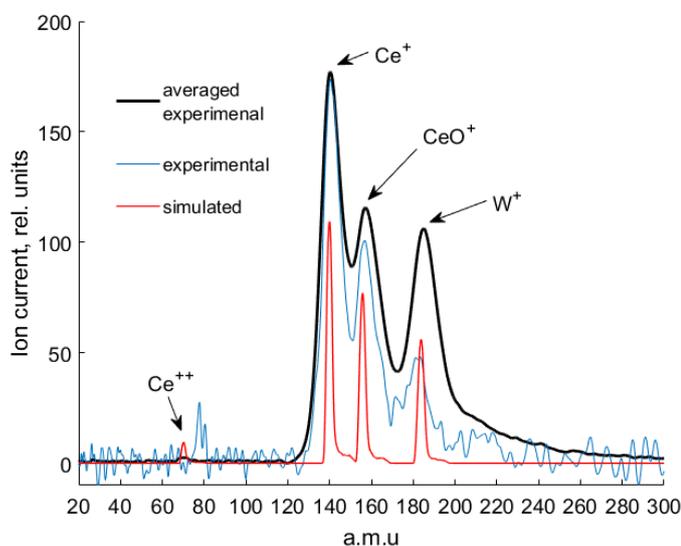


Рис.2.8. Масс-спектр плазмы диффузной вакуумной дуги на катоде из CeO_2 в вольфрамовом тигле. Ток разряда 60 А, напряжение 10.3 В.

Как видно из рисунка 2.8 массовые пики отдельных ионов плазмы взаимно пересекаются, что затрудняет анализ и сопоставление площадей под графиком для каждого сигнала. Обычно для разрешения подобных спектров используется математические методы разложения сигнала

по базисным функциям, например гауссовым [124]. В данной работе спектр одиночного сигнала (аппаратная функция), рисунок 2.7, не является гауссовой функцией. Поэтому применялась процедура, описанная в разделе «Интерпретация данных». Результат подбора единичных пиков под форму экспериментального спектра приведен на рисунке 2.9.

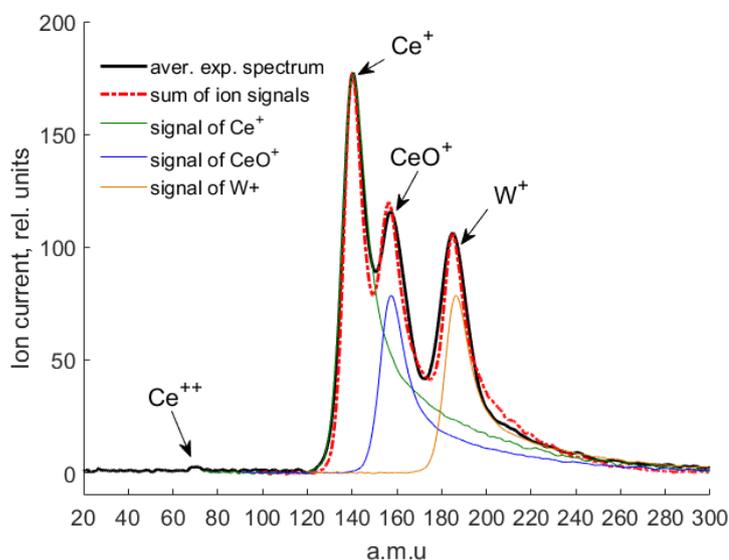


Рис.2.9. Разбиение массового спектра на единичные пики.

Разбиение сигнала, позволяет оценить содержание каждой ионной компоненты в плазме. Так ионов Ce^+ - $8,7 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$, CeO^+ - $3,9 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$, W^+ - $3,9 \times 10^9 \text{ см}^{-3}$. Количественное содержание ионов Ce^{++} определить не удастся из-за малости сигнала, однако, исходя из амплитуд пиков, можно сказать, что концентрация двукратных ионов на 2-3 порядка ниже, чем Ce^+ . Таким образом, можно заключить, что возможен анализ плазм с концентрацией ионов до 10^8 см^{-3} . Также приведенное разбиение сигнала на единичные импульсы демонстрирует, что между сигналами ионов Ce^+ , CeO^+ и W^+ нет признаков сигналов других ионов, например, CeO_2^+ . Приведенные данные спектров ионов и их анализ позволяют сделать положительное заключение о работоспособности ВМС в требуемых экспериментальных условиях.

2.5. Выводы ко второй главе

Представлен линейный времяпролетный МС с массовым разрешением $R \approx 20$, который предназначен для детектирования ионного состава непрерывного плазменного потока. Концентрация плазмы в потоке, которая может быть проанализирована, составляет диапазон 10^8 -

10^{10} см^{-3} при энергии налетающих ионов ~ 10 эВ. Времяпролетный МС реализован на основе подхода Wiley с модифицированной двухсекционной схемой ускорения ионов, которая учитывает непрерывное поступление диагностируемой плазмы в прибор. Преимуществом представленного ВМС является простота конструкции, он может быть изготовлен в лабораторных условиях без значительных денежных затрат.

Описан и реализован метод определения абсолютных содержаний долей ионных компонент плазменного потока при помощи представленного времяпролетного МС. Метод основывается на определении аппаратной функции МС и калибровке датчика ионов по измеренной концентрации на входе в прибор.

Разработанный МС апробирован в задаче диагностики плазменного потока диоксида церия, генерируемого вакуумным дуговым разрядом. С его помощью были получены данные о количественном соотношении ионов в плазменном потоке, отличающихся по массе на 16 а.е.м. (масса атома кислорода). Проведенные эксперименты показали, что представленный прибор может быть успешно использован для диагностики состава металлической плазмы и плазмы, содержащей ионы оксидов металлов.

Глава 3

Исследование параметров генерируемой плазмы на основе диффузной вакуумной дуги с монокомпонентным катодом из оксид-содержащего материала

В данной главе изложены результаты экспериментальных исследований диффузного вакуумного дугового разряда с катодом, изготовленным из отдельного вещества. Эксперименты проводились с веществами, моделирующими процессы конвертации в плазменное состояние ОЯТ, а именно с гадолинием и диоксидом церия. В разделе 3.1 описывается экспериментальная установка и применявшиеся методы исследования плазмы. Раздел 3.2 содержит результаты экспериментов с металлическим катодом из гадолиния. Разделы 3.3-3.6 содержат результаты экспериментов с керамическим катодом из диоксида церия. В разделе 3.7 отмечается важная особенность фазового перехода в системе церий-кислород – неконгруэнтность плавления. Приведены результаты расчета равновесного состава пара над поверхностью катода и показано присутствие кислорода. Описан эксперимент по поиску отрицательных ионов в составе плазмы и его результаты. В главе представлен анализ полученных данных и наблюдавшихся особенностей горения дугового разряда на диоксиде церия, проведено сравнение разрядов на металлическом и керамическом катодах, делается вывод о целесообразности дальнейшего исследования данного источника плазмы в рамках работ по развитию метода плазменной сепарации ОЯТ.

3.1. Экспериментальная установка и методы диагностики

ВД разряд инициировался в цилиндрической вакуумной камере диаметром 300 мм и высотой 600 мм при давлении остаточных газов $\sim 5-10$ мПа. Анод разряда представлял собой неохлаждаемый молибденовый диск диаметром 120 мм и толщиной 0,5 мм с центральным отверстием диаметром 14 мм (рисунок 3.1). Катод разряда представлял собой рабочее вещество – диоксид церия или гадолиний, помещенное в тигель из тугоплавкого металла (в зависимости от эксперимента или молибден, или вольфрам). Тигель имел цилиндрическую форму с внешним диаметром 24 мм и высотой 15 мм и выходным отверстием 14 мм. Он дополнительно разогревался при помощи электронно-лучевого подогрева мощностью до 1,5 кВт. Диоксид церия использовался в виде таблетки массой около 5 г предварительно спеченной и восстановленной до стехиометрического состава 2,0. Таблетка также имела цилиндрическую форму диаметром 13 мм и высотой до 9,5 мм. Пористость таблеток лежала в диапазоне 40-60 %. Пористость была

определена путем сравнения плотности таблетки и плотности кристалла диоксида церия. Температура тигля измерялась яркостным пирометром. Инициации дуги с диоксидом церия предшествовал нагрев тигля с помощью ЭЛП до ~2,1 кК.

В экспериментах с металлическим катодом гадолиний закладывался в тигель небольшими кусками, т.к. температура его плавления равна 1586 К, а инициация разряда происходила при температуре тигля ~1900 К, то в процессе горения разряда катод был в жидком состоянии и его поверхность представляла собой ровную плоскость.

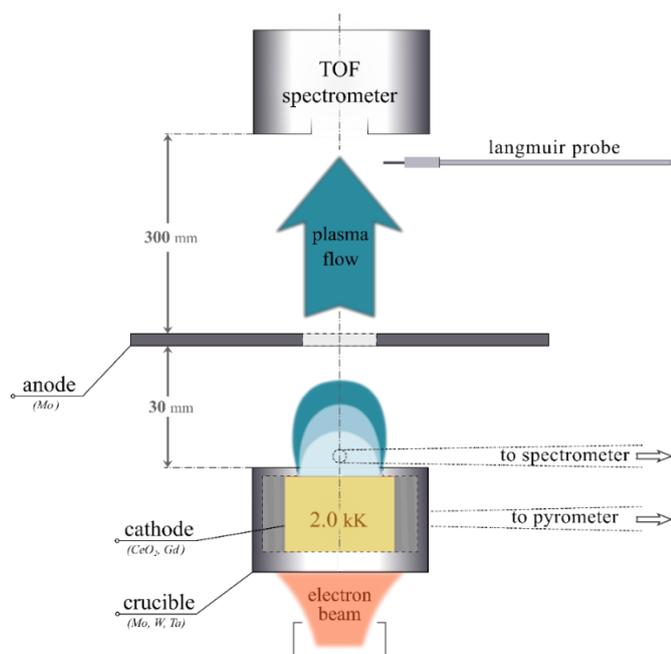


Рис. 3.1. Схема эксперимента.

Режим дугового разряда задавался набором следующих параметров: током дуги I , напряжением дуги U_a и температурой тигля T_c . В ходе экспериментов ток варьировался от 40 до 90 А, напряжение лежало в диапазоне от 10 до 14 В, а температура внешней поверхности тигля в диапазоне от 2,15-2,35 кК. Следует отметить, что температура тигля зависела не только от мощности ЭЛП, но и от тока дуги.

Во время эксперимента непрерывно регистрировались напряжение разряда и температура тигля, проводилась видеозапись потока плазмы в разрядном промежутке. Взвешиванием определялся унос массы с катода за время опыта. Непрерывно регистрировался эмиссионный спектр плазмы. Для этого использовался спектрометр с разрешающей способностью 0.3 нм в спектральном диапазоне 200-400 нм. Сбор излучения производился из области вблизи выходного отверстия тигля (рис.3.1).

Для исследования ионного состава плазмы использовался времяпролетный МС. Входная диафрагма МС находилась на расстоянии 25 см от анода на оси разряда, т.е. регистрировался масс-спектр вышедшего в заанодное пространство потока плазмы. Согласно измерениям зондом

Ленгмюра концентрация плазмы у анода составляет порядка 10^{12} см⁻³ [93], в этом случае главный механизм рекомбинации – радиационная рекомбинация ($\alpha \sim 10^{-12}-10^{-13}$ см³/с – коэффициент радиационной рекомбинации) [125]. Энергия ионов в выходящем потоке около 10 эВ. По оценкам, доля рекомбинировавших частиц в этом случае порядка 10^{-3} , следовательно измеренный состав плазмы мало (на величину порядка 0,1%) отличается от состава плазмы вблизи анода. Пример масс-спектров, регистрируемых в эксперименте, представлен на рисунке 3.2. Выделяются массовые пики Ce^+ , Ce^{++} , CeO^+ , W^+ , Mo^+ , массы 140, 156, 183 и 96 а.е.м. соответственно. При обработке данных эксперимента брались масс-спектр плазмы, полученный усреднением по времени за интервал 10-30 секунд (спектр с МС считывается с частотой 10 Гц). Это делалось для снижения роли кратковременных флуктуаций состава и улучшения соотношения сигнал-шум (последнее при таком усреднении имеет величину порядка 10^2).

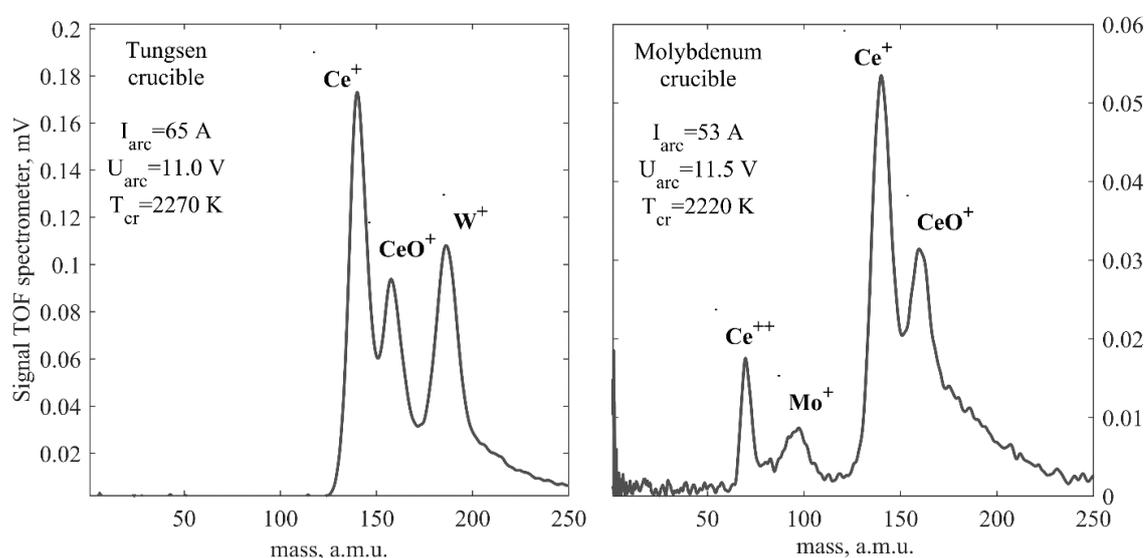


Рис. 3.2. Примеры масс спектров плазмы диффузной дуги с катодом из CeO_2 в тигле из молибдена и вольфрама

3.2. Ионный состав плазмы диффузной вакуумной дуги с катодом из гадолиния

В данной серии экспериментов 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. В ходе обработки полученных данных рассматривались нормированные на максимум

интенсивности спектральных линий. На рисунке 3.3 представлен пример зарегистрированного спектра плазмы в режиме с напряжением дуги 6,8 В.

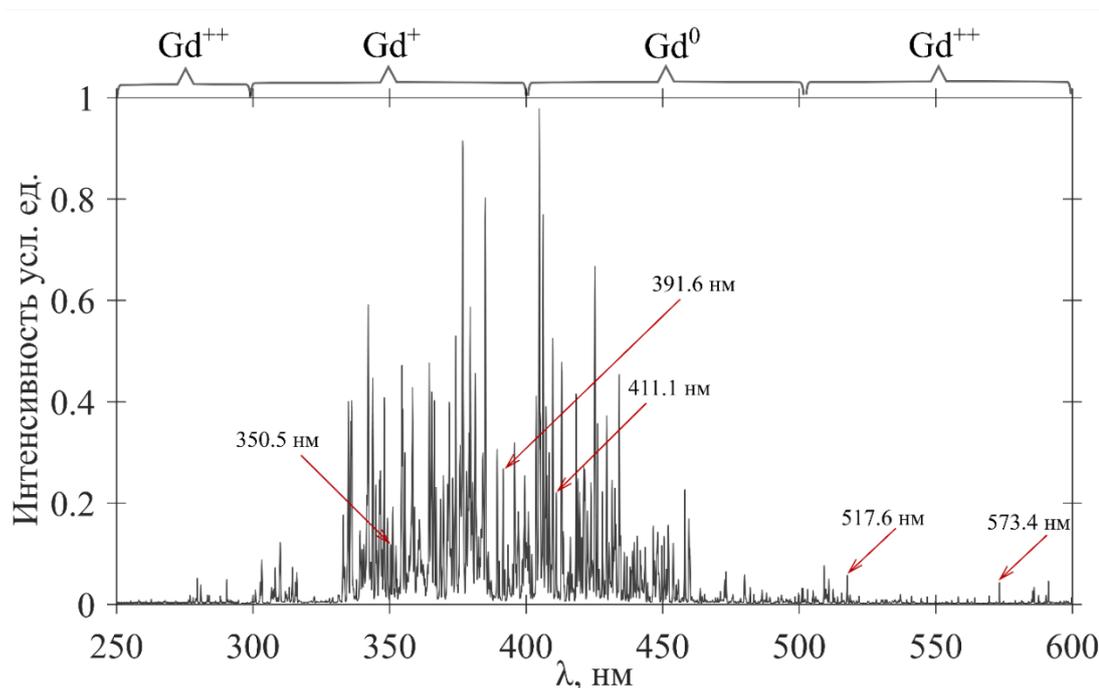


Рис. 3.3. Пример зарегистрированного эмиссионного спектра плазмы в режиме с напряжением дуги 6,8 В. На спектре указаны линии однократных ионов гадолиния, за которыми производилось наблюдение, а также спектральные области преобладания линий ионов различной кратности

Зарядовый состав плазмы дуги с ДКП исследовался в зависимости от величины напряжения разряда. Увеличение напряжения вызывало повышение равновесной температуры электронов [126], 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 МС (глава 2) регистрировался сигнал ионов в виде импульсов напряжения, каждому режиму разряда по напряжению соответствовала своя осциллограмма сигнала. Пример типичной осциллограммы приведен на рисунке 3.4. На основании полученных данных определялись концентрации ионов.

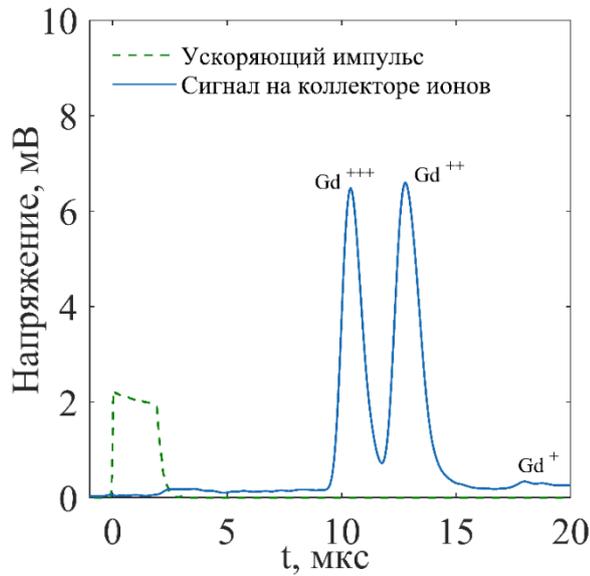


Рис. 3.4. Пример осциллограммы сигнала с коллектора времяпролетного масс-анализатора ($U_d = 13,4$ В).

Зависимость концентраций ионов гадолиния от напряжения дуги представлена на рисунке 3.5 а. Результаты получены путем усреднения по нескольким сериям измерений.

При меньших концентрациях возможно только проведение грубых оценок. К примеру, при напряжении разряда $U_d = 13,4$ В наблюдался сигнал однократных ионов, но их концентрация была примерно на два порядка меньше концентрации двукратных и трехкратных ионов в этом режиме ($n_{Gd^+} \sim 10^7$ см⁻³).

Отметим, что увеличение напряжения на разрядном промежутке производилось путем снижения температуры тигля (мощности ЭЛП), а, следовательно, и концентрации паров плазмообразующей 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 $U_d = 4$ В температура тигля была 1950 К, а при напряжении 6 В – 1920 К. При таком изменении температуры концентрация насыщенных паров падает примерно в 1,5 раза [76], 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 возрастала примерно в 1,3 раза. Это хорошо согласуется с результатами измерения среднего заряда частиц плазмы методом конденсационного зонда из работы [126]. 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 6,0 – 6,5 В средний заряд близок к 1 [126]. Как следует из масс-спектрометрических и оптических измерений в этом режиме доля двукратных ионов мала, следовательно, степень ионизации плазмы приближается к 100 % (> 90%).

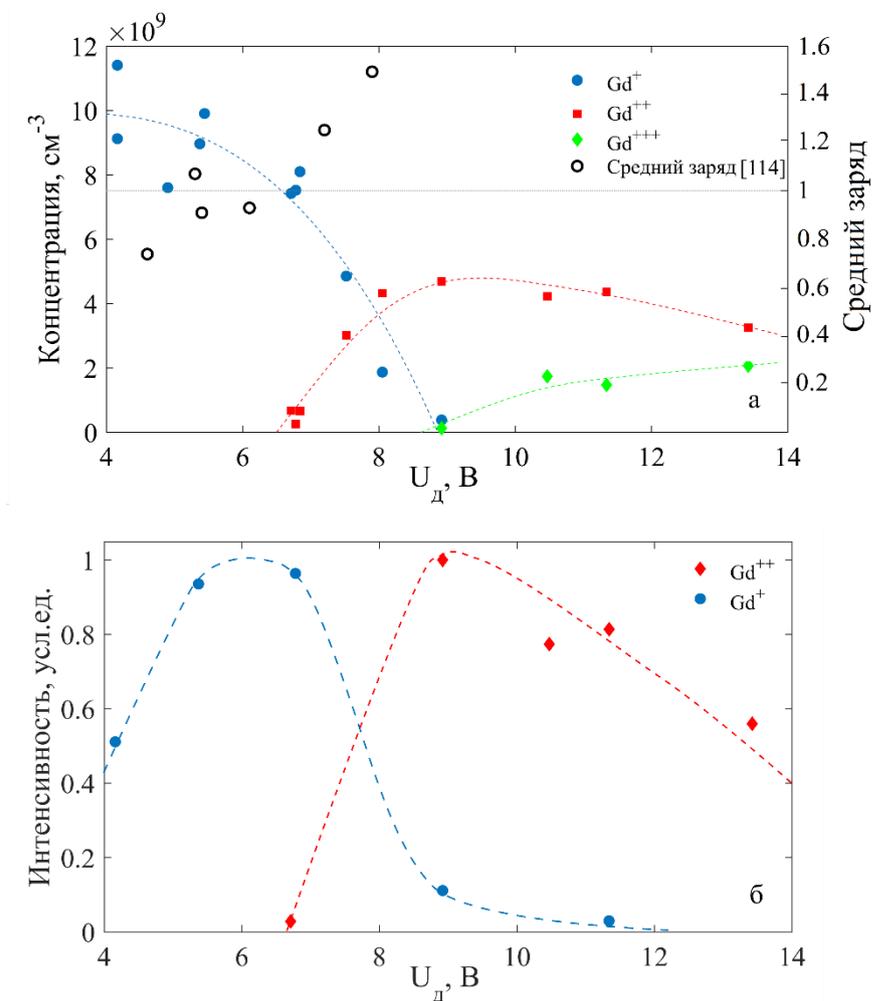


Рис. 3.5. а) - концентрации ионов гадолиния в различных режимах горения дуги с ДКП, б) - нормированная на максимум усредненная интенсивность спектральных линий.

На рисунке 3.5 б представлены зависимости нормированных интенсивностей однократных и двукратных ионов, от напряжения разряда $I_{\text{норм}}(U_d)$. 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.

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

Напряжение			
разряда,	Gd ⁺	Gd ⁺⁺	Gd ⁺⁺⁺
В			
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%

Таблица 1. Ионный состав плазмы при различных напряжениях дугового разряда.

Зависимости $I_{\text{норм}}(U_{\text{д}})$ и $n_{\text{и}}(U_{\text{д}})$ в диапазоне от 5 до 14 В ведут себя сходным образом – с ростом напряжения уменьшается и концентрация и интенсивности линий (рисунок 3.5). 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 $U_{\text{д}}$ от 4 до 10 В рост $T_{\text{е}}$ 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.

3.3. Временная эволюция параметров диффузной вакуумной дуги с катодом из CeO_2 и режимы вакуумной дуги

В ходе первой серии экспериментов с катодом из диоксида церия наблюдалось изменение параметров разряда с течением времени. На рисунке 3.6 показана характерная зависимость напряжения и температуры тигля от времени для случая катода из диоксида церия в молибденовом тигле. Температура тигля поддерживалась приблизительно постоянной, ток разряда был фиксирован 65 А. Видно, что напряжение флуктуирует, причем амплитуда

флуктуаций напряжения снижается с течением времени. Например (рисунок 3.6), на интервале 200-300 с амплитудой флуктуаций примерно 0.7 В (относительная амплитуда флуктуаций 6,3 %), а на интервале 500-600 с – 0,2 В (1,9 %). Помимо напряжения, флуктуировали и другие параметры плазмы. Например, интенсивности спектральных линий и мгновенные значения амплитуд массовых пиков. Относительная амплитуда флуктуаций массовых пиков, как и у напряжения, меняется с течением времени, и лежит в диапазоне 10-30 %. Во-вторых, среднее значение напряжения снижается с течением времени примерно на 1-1,5 В (~10 % от первоначального значения).

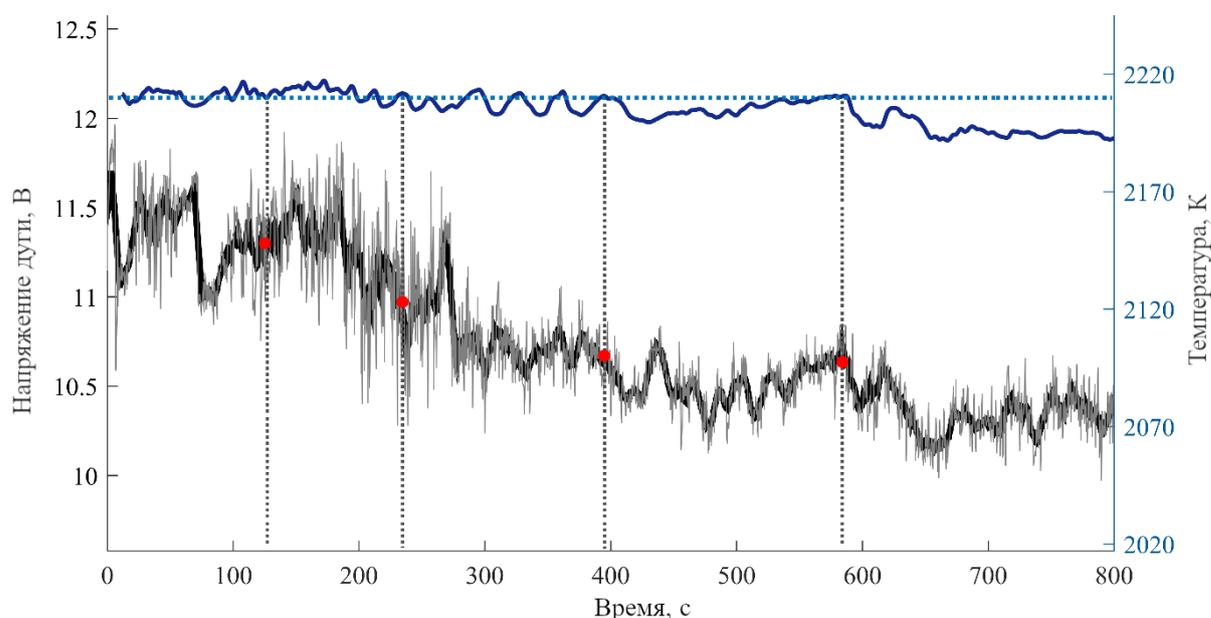


Рис. 3.6. Временная эволюция напряжения разряда (красные точки обозначают одинаковую температуру). Ток дуги 65 А, молибденовый тигель.

Такое поведение может быть связано с расходом катода из диоксида церия, и уменьшением его толщины, а также с перераспределением тока в его объеме. Действительно, падение напряжения на разрядном промежутке складывается из падений напряжения на плазменном столбе и на материале электродов. Оксид церия имеет существенно большее электрическое сопротивление, чем металлы. В такой ситуации падение напряжения непосредственно на самом катоде может составлять заметную часть от падения напряжения на всем разрядном промежутке, а уменьшение толщины материала катода может вызывать наблюдаемое снижение напряжения на разрядном промежутке.

Ни в одном из известных справочников не приводится значение электропроводности CeO_2 при температуре 2200 К (справочные данные представлены для температур ≤ 1737 К). Экстраполяция данных из [120] на 2200 К позволяет оценить проводимость CeO_2 как $\sim 10 (\text{Ом}\cdot\text{см})^{-1}$. Сопротивление катода составляет около 0,07 Ом с учетом его размера. Наши

собственные оценки суммарного сопротивления основной части катода и контакта катод-тигель, основанные на измерениях кривой ток-напряжение разряда, дают значение около 0,03 Ом [93]. Протекание тока 65 А через катод вызывает падение напряжения на уровне 2-4 В, что значительно меньше общего напряжения дуги. Таким образом, CeO_2 способен проводить ток дуги.

Необходимо обратить внимание на тот факт, что ВД разряд с подогреваемым катодом из диоксида церия заметно отличается по стабильности от разрядов на металлах. Результаты исследования ионного состава плазмы изложенные ниже соответствовали временным интервалам «стабильного горения». Однако, кроме них во всех сериях экспериментов присутствовали интервалы, на которых наблюдались случайные скачки параметров разряда, сопровождающиеся повышением доли двукратных ионов. Причем частота возникновения таких событий как правило возрастала примерно после 800 с от начала эксперимента (при массе катода около 5 г). В частности, было установлено, что геометрия свечения плазменного столба менялась в ходе эксперимента (рисунок 3.7). Заметно преобладающим направлением было вертикальное. Изменения направления происходили хаотично и режимы с конкретным направлением длились от нескольких секунд до нескольких минут. Как правило, в режимах с разным направлением плазменного столба, отличался и ионный состав плазмы.

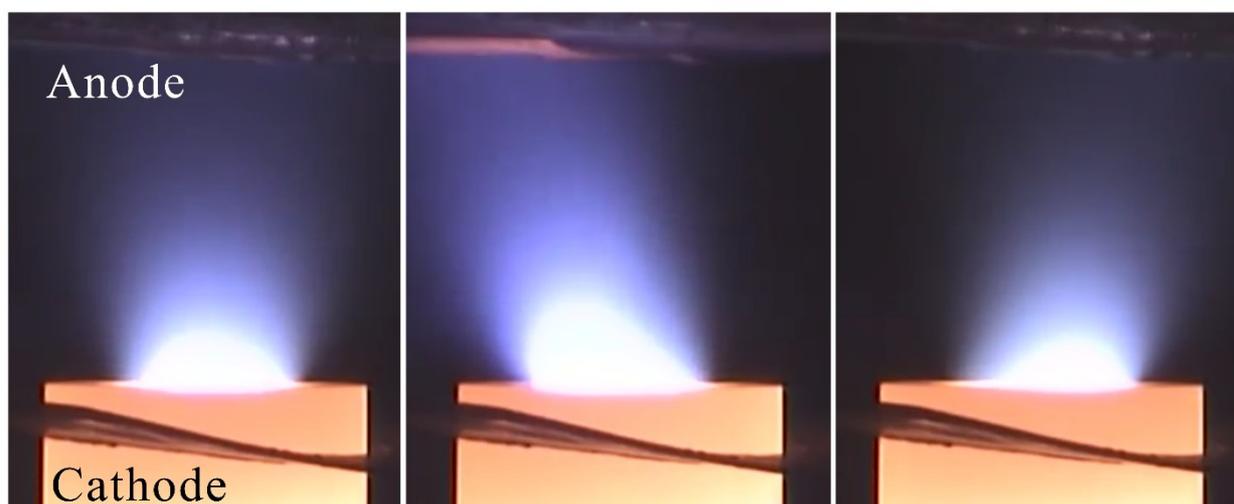


Рис. 3.7. Фотографии дугового разряда в разных по форме свечения режимах, полученных в течении одного эксперимента

Наличие подобных интервалов нестабильного горения, характерно для вакуумных дуг при появлении на поверхности катодных пятен [40]. Поэтому была проведена дополнительная серия экспериментов, в которых осуществлялись наблюдения за поверхностью катода. Видеозапись

велась сверху через отверстие в аноде, фактически с места расположения времяпролетного масс-спектрометра на схеме эксперимента. Было обнаружено, что в случае оксидного катода, возможно появление движущихся макроскопических пятен (рисунок 3.8).

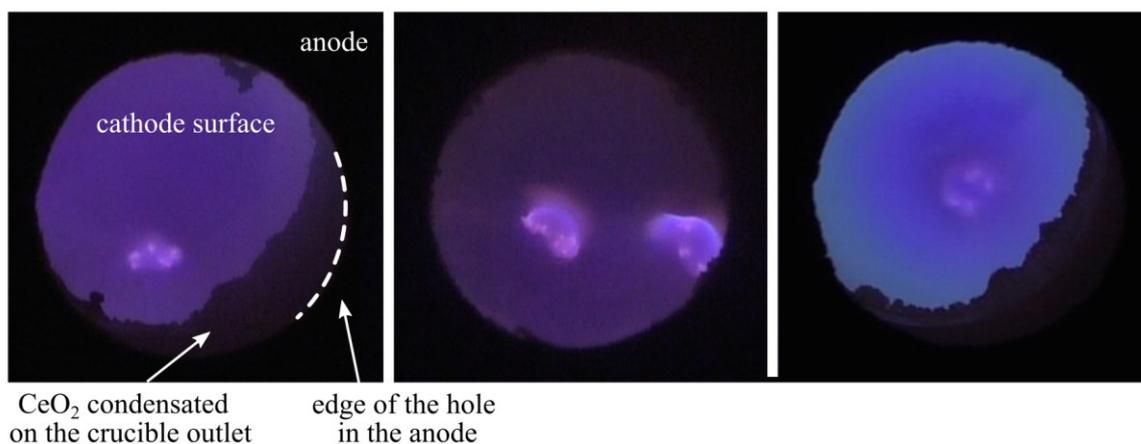


Рис. 3.8. Фотографии катодных пятен в двух различных экспериментах (катод – CeO_2 , тигель – Mo).

Количество наблюдаемых пятен менялось от 1 до 6. Размеры областей свечения пятен составляли около 0,3 мм. Наблюдалась локализация пятен вокруг нескольких центров на поверхности катода. Время жизни пятен было порядка секунд. Это позволяет отнести наблюдаемые пятна к квазистационарному 2 типу. При этом наблюдались как режимы с пятнами, так и режимы без пятен. Режим диффузным типом привязки тока на катод был достигнут при понижении тока дуги до 40 А. Отметим, что ранее наблюдались пятна на поверхности электродов с керамическим покрытием. Например, в работе [128] были зарегистрированы пятна на поверхности электрода, покрытого слоем W_4C . Время жизни пятен также составляло порядка секунд. В отмеченной работе был сделан вывод, что ключевую роль в появлении пятен играет зависимость проводимости W_4C от температуры.

3.4. Влияние температуры катода на ионный состав плазмы

Следующим рассмотренным аспектом был вопрос о влиянии на разряд температуры катода. Для этого была проведена серия экспериментов с молибденовым тиглем, когда ток разряда поддерживался постоянным, а варьировалась мощность ЭЛП и, как следствие, температура тигля. В эксперименте с током 65 А температура тигля менялась в диапазоне от 2200 до 2270 К, при этом напряжение на разрядном промежутке изменялось в диапазоне от 11,5 до

12,2 В (рисунок 3.9). Таким образом, температура тигля является кандидатом на роль еще одного независимого параметра (кроме тока разряда), позволяющего влиять на характеристики вакуумной дуги. Отметим, что при более значительных изменениях температуры в ходе эксперимента разряд переходил в нестабильный режим, т.е. возникало хаотичное скачкообразное изменение параметров разряда с течением времени.

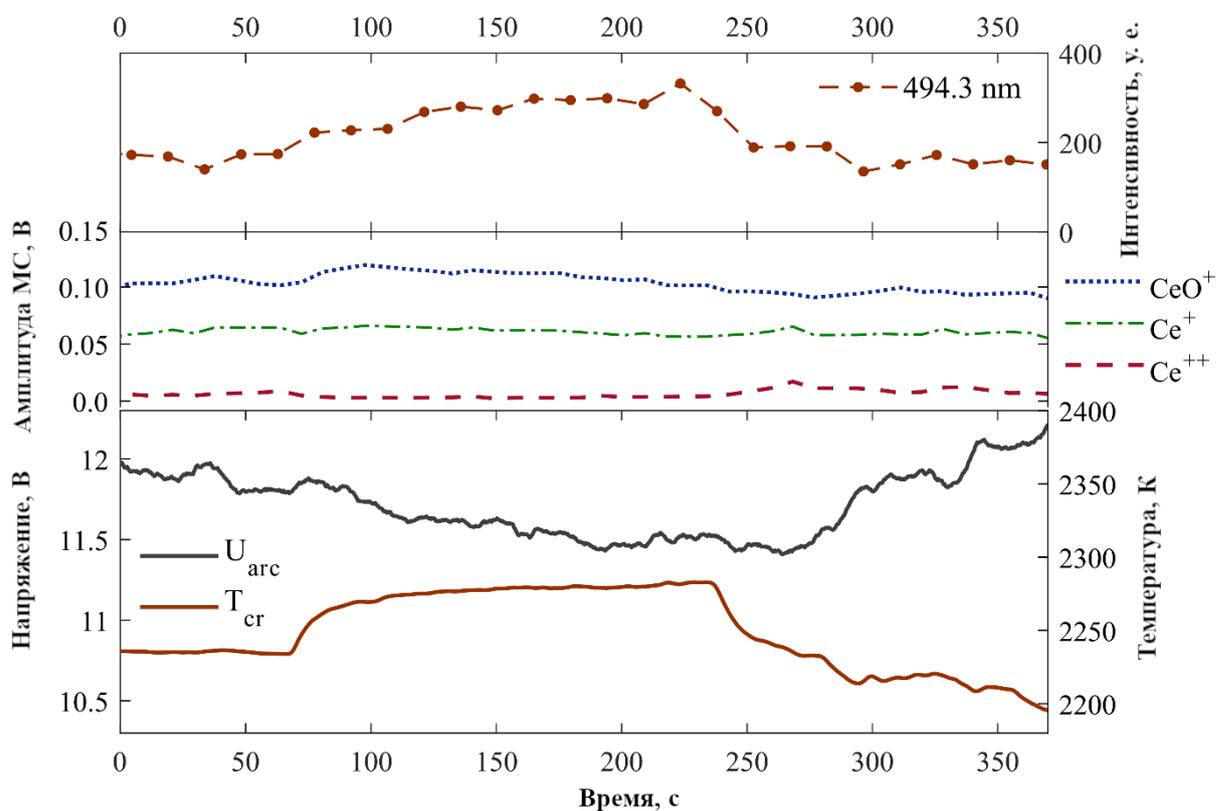


Рис. 3.9. Временная эволюция напряжения разряда, амплитуд массовых пиков и интенсивности спектральной линии Ce II (494.3 нм) при фиксированном токе разряда равном 65 А.

Использование масс-спектропии позволило исследовать ионный состав плазмы при различных режимах разряда. В частности, для обсуждаемой серии экспериментов на рис. 3.9 представлены данные об амплитудах массовых пиков, отвечающих CeO^+ , Ce^+ , Ce^{++} . Видно, что их изменение не очень велико. Более существенные изменения состава происходят при варьировании тока, либо при переходе разряда в нестабильный режим. Аналогичные результаты по влиянию температуры тигля на параметры разряда были получены и при других токах разряда. Таким образом, было установлено, что изменение температуры тигля в области существования стабильного разряда не очень существенно влияет на состав плазмы.

На качественном уровне этот результата можно пояснить в рамках следующей гипотезы. Изменение ионного состава плазмы инициируется двумя основными причинами: диссоциацией молекул и ионизацией. Главный механизм и ионизации, и диссоциации в рассматриваемой

системе – это электронный удар. Рассмотрим диссоциацию: скорость процесса зависит от плотностей молекул и электронов, их энергии и сечения реакции. Возьмем случай роста температуры катода. Он вызывает увеличение как плотности потока плазмообразующей среды (пара CeO_2), так и плотности потока электронов термоэмиссии. Таким образом, в рассматриваемом диапазоне изменения температур отношение плотностей молекул и электронов может варьироваться незначительно. Предположив, что температура электронов также изменяется слабо, получаем вывод об отсутствии заметного влияния температуры тигля на состав плазмы. В пользу этого предположения может свидетельствовать тот факт, что на температуру электронов влияет именно падение напряжения на плазменном столбе, которое может оставаться практически неизменным при изменении напряжения на разрядном промежутке, которое может быть связано с изменением падения напряжения на материале катода.

3.5. Зависимость ионного состава плазмы от тока разряда

Следующая серия экспериментов была посвящена изучению ионного состава плазмы в зависимости от тока разряда при фиксированной температуре тигля. Использовались как вольфрамовый, так и молибденовые тигли. Зависимости ионного состава плазмы от тока разряда показаны на рисунке 3.10.

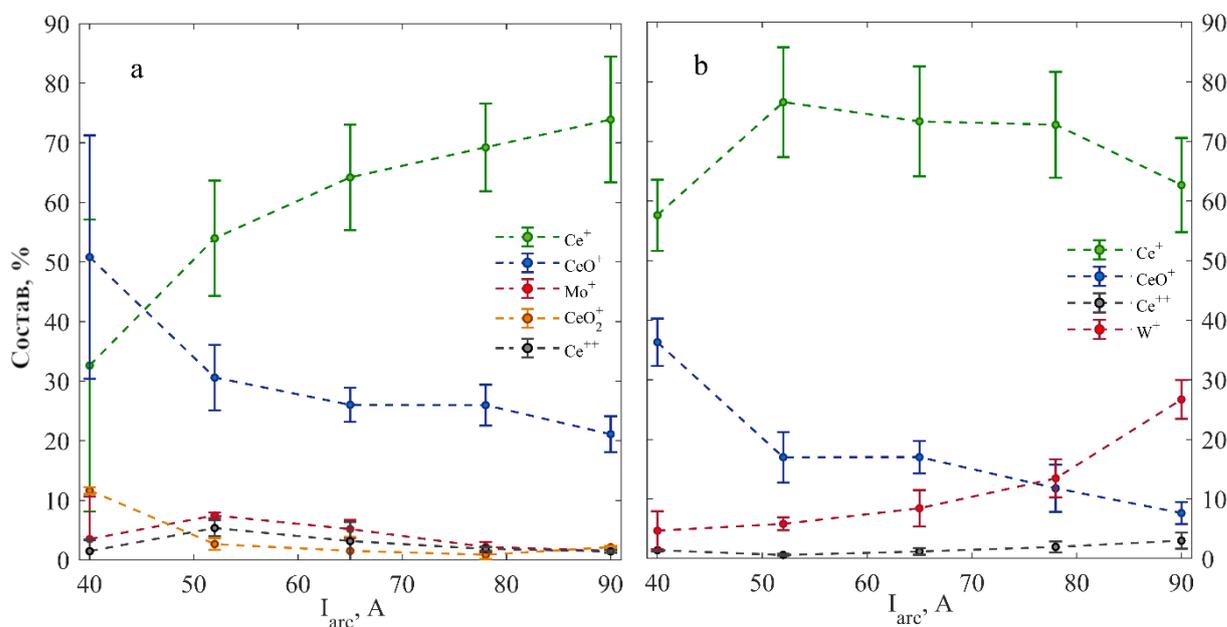


Рис. 3.10. Ионный состав плазмы при различных токах дуги для молибденового тигля с температурой 2220 К (а) и вольфрамового тигля при температуре 2270 К (б).

На графиках 3.10а и 3.10б виден общий тренд на уменьшение доли молекулярных ионов с ростом тока разряда. Также как при использовании вольфрамового тигля, так и при использовании молибденового тигля почти не изменяется доля двукратных ионов с ростом тока, в то время как заметно отличаются тенденции для количества ионов материала тигля. Доля ионов молибдена слабо снижается с ростом тока, а доля ионов вольфрама наоборот значительно растет и при токе 90 А составляет почти 30 % плазменного потока. Данные результаты можно интерпретировать следующим образом: рост тока разряда при неизменной геометрии плазменного столба приводит к росту концентрации электронов в разряде. Как уже отмечалось выше, в диапазоне параметров исследуемой плазмы основным каналом диссоциации молекул является электронный удар. При этом ранее было показано [93], что при изменении тока разряда от 40 до 90 А температура электронов остается неизменной. Следовательно, рост концентрации должен приводить к увеличению числа диссоциировавших молекул $CeO - Ce + O$.

Помимо данных об относительном содержании компонентов плазмы, важна информация об абсолютных значениях концентрации. В таблице 2 представлена зависимость общей концентрации плазмы от тока, которая дополняет рис. 3.10

Arc current, A	40	53	65	78	90
$n_{\text{общ}}, \text{см}^{-3} \cdot 10^9$ (W тигель)	10.3	12.1	12.5	8.5	9.2
$n_{\text{общ}}, \text{см}^{-3} \cdot 10^9$ (Mo тигель)	6.8	6.0	6.8	4.4	3.4

Таблица 2. Зависимость общей концентрации плазмы от тока разряда

Т.к. результаты экспериментов по определению ионного состава плазмы продемонстрировали присутствие ионов материала тигля в потоке генерируемой плазмы, то этот вопрос был проанализирован более детально.

В таблице 3 приведены данные по температурам, при которых достигается давление насыщенного пара порядка 1 Па для молибдена, вольфрама и их оксидов [129]. В первую очередь необходимо отметить, что давление насыщенного пара вольфрама и молибдена при температурах близких к 2000 К настолько мало, что средой для формирования регистрируемых ионов он быть не может. Давление же насыщенных паров над оксидами вольфрама и молибдена значительно

больше. Таким образом, при температурах, достигаемых в экспериментах, вольфрам и молибден могли попадать в плазмаобразующий пар преимущественно в форме оксидных соединений.

	Mo	MoO ₂	MoO ₃	W	WO ₃	WO ₂
T, K	2800	2028	1400	2000	1500	1531
P, Pa	1,8	5,0	1,8×10 ⁵	8,6×10 ⁻¹⁰	7,8	9,8

Таблица 3. Температуры, при которых достигается давление насыщенных паров близкое к 1 Па.

Появление оксидов материала тигля вероятно является следствием как непосредственного взаимодействия материала тигля и материала катода (CeO₂), так и неконгруэнтной природы фазового перехода диоксида церия [130], из-за которой при нагреве газовая фаза обогащается кислородом.

Фактически, оценки показывают, что образование диоксидов молибдена и вольфрама возможно при контакте тигля с катодным материалом при высоких температурах. Разница стандартной свободной энергии Гиббса ΔG_0T реакции $4CeO_2 + M \rightarrow 2Ce_2O_3 + MO_2$, где M - W или Mo, становится отрицательной после 2030 K [131]. При температуре 2200 K в дуге $\Delta G_0T=2200\text{ K} \approx -17\text{ кДж/моль}$, поэтому окисление W и Mo таким способом представляется энергетически выгодным. Образование триоксида MoO₃ и WO₃, в свою очередь, является результатом окисления Mo и W в кислородсодержащей среде [132] [133].

Для изучения временной эволюции доли материала тигля был проведен эксперимент при постоянном токе разряда и температуре тигля (Mo - 2220 K, W – 2200 K). В результате была получена зависимость концентрации атомарных ионов материала тигля от времени эксперимента (рис. 3.11). Из представленных данных видно, что как концентрация ионов молибдена, так и концентрация ионов вольфрама к концу эксперимента падает. Это может быть объяснено расходом материала катода, т.к. чем меньше остается CeO₂ в тигле, тем меньше тигель окисляется. Отличие же в формах временных эволюций может быть связано с разницей в скоростях процессов окисления для вольфрама и молибдена и в скоростях испарения оксидов в условиях эксперимента.

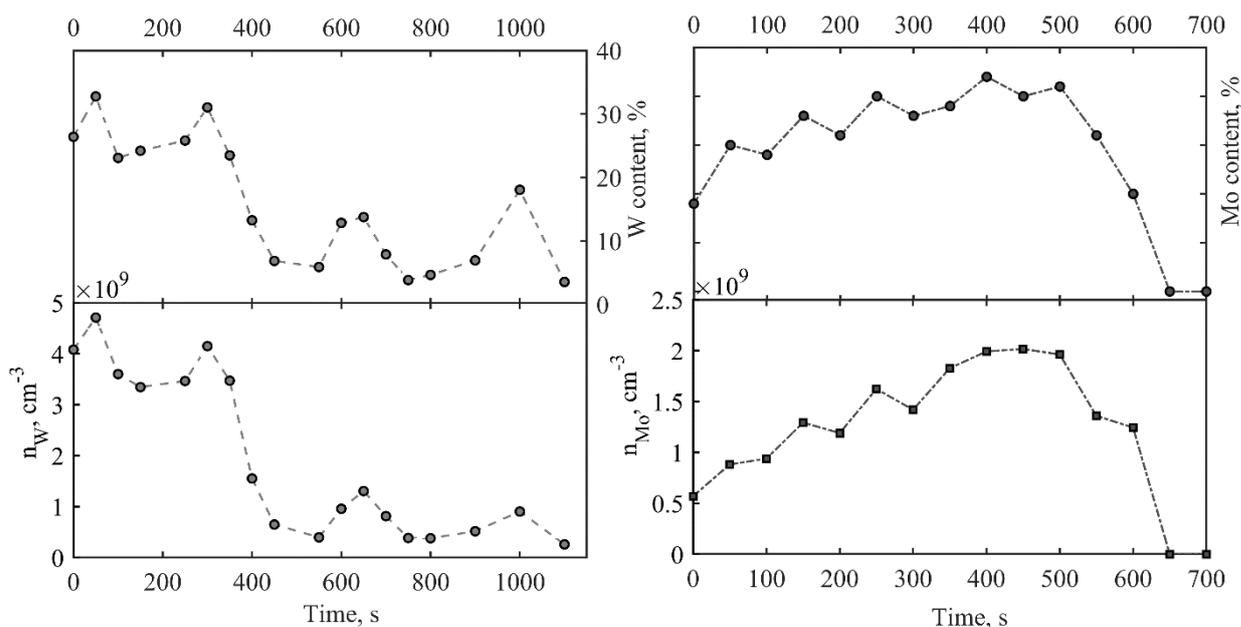


Рис. 3.11. Временная эволюция концентрации ионов материала тигля во время эксперимента при постоянных токе разряда 65 А и температуре тигля (Мо - 2220 К, W – 2200 К).

Присутствие в потоке плазмы атомарных, а не молекулярных, ионов вольфрама и молибдена хорошо согласуется с тем, что и церий, изначально испаряющийся в виде CeO_2 [93], диссоциирует в плазме, в результате чего преобладает доля атомарных ионов (рис. 5). Тем не менее, в случае молибденового тигля в некоторых режимах были обнаружены следы MoO_2^+ (128 а.е.м.). Например, при токе 65 А, напряжении 10,5 В и температуре тигля 2210 К. Добавим, что доля Mo^+ в данном режиме составляла примерно 15 %. Еще раз отметим, что в случае использования вольфрамового тигля молекулярных ионов вольфрама зарегистрировано не было.

3.6. Особенности горения вакуумной дуги с керамическим катодом

Приведенные в разделе 3.2 результаты демонстрируют качественное отличие вакуумной дуги на оксидном катоде от вакуумной дуги на металлическом катоде, например, из Gd [126], которое выражается в большей амплитуде флуктуаций параметров разряда, существовании нестабильных режимов с ионами большей кратности и возможности появления пятен. Подобное отличие может быть связано с тем, что теплофизические свойства диоксида церия существенно отличаются от свойств чистого металла. Электрическая проводимость катода из диоксида церия сильно зависит от его температуры и состава, а при нормальных условиях стремится к нулю. В частности, при повышении температуры от 1100 К до 1800 К проводимость увеличивается на 3 порядка [134]. Более того, при температуре конденсированного CeO_2 выше 1700 К начинается

постепенный сдвиг стехиометрии в субстехиометрическую область [130], что также вызывает изменение проводимости.

Последнее обстоятельство также является важным фактором. Влияние микрорельефа на свойства разряда изучается достаточно давно. В частности показано, что использование катодов с полированной и грубой поверхностью катода приводит к изменению величины напряжения разряда [135]. В нашем случае, реализующейся микрорельеф также может влиять на свойства разряда. Для примера приведем кадры видеозаписи поверхности катода в трех разных экспериментах (рис. 3.12). На первом кадре (а) наблюдается наиболее однородная по свечению поверхность катода, именно в этом эксперименте был зарегистрирован диффузный режим протекания тока. На кадре (б) наблюдаются две области неоднородности, которые также были центрами локализации пятен. Эти наблюдения демонстрируют, хаотичность в формировании микрорельефа, и его взаимосвязь с актами появления катодных пятен. Отметим дополнительно работу [136], в которой было проанализировано взаимодействие микропротрузий с плазмой и показано существование обратной связи между параметрами подобных неоднородностей на поверхности (температурой и формой) и параметрами плазмы (плотность, распределение потенциала, температура, ионный состав).

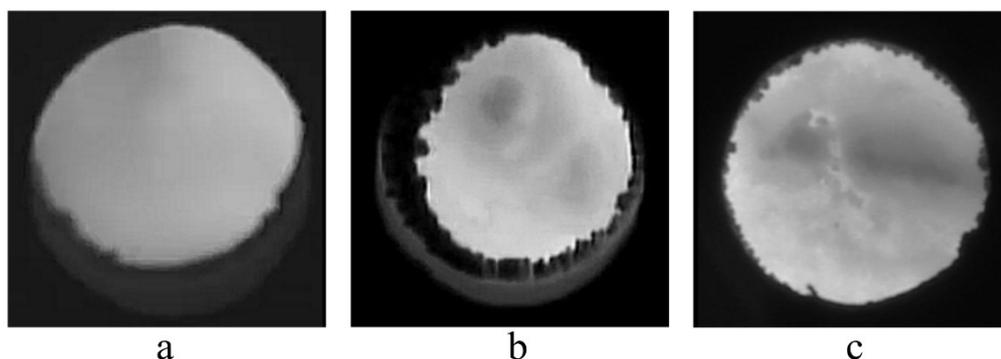


Рис. 3.12. Фотографии поверхности катода в различных экспериментах.

Обобщая вышесказанное и проводя сравнение с разрядом на металлическом катоде, мы можем выделить два фактора значительно меняющие процессы на поверхности катода и приводящие к эволюции характеристик разряда в случае катода из CeO_2 : во-первых, особенности теплофизических свойств диоксида церия, и, во-вторых, наличие рельефа поверхности катода. Влияние второго фактора, вероятно, может быть значительно снижено, например, при создании на поверхности катода более однородного распределения температуры. Это можно осуществить, дополнительно разогревая поверхность катода.

3.7. Отрицательные ионы в составе плазмы

Для анализа доли кислорода в составе пара над поверхностью катода проведем анализ неконгруэнтного фазового перехода в системе церий-кислород. Рассматривается следующая термодинамическая система: стехиометрический диоксид церия $CeO_{2,0}$ помещается в металлический тигель, в котором имеется маленькое отверстие. Материал тигля химически неактивен. Считалось, что поток вещества через отверстие настолько мал, что успевает установиться термодинамическое равновесие между паром и конденсированным CeO_2 .

Состав пара в такой системе можно рассчитать методами физической химии. Исходя из термодинамического равновесия в системе, можно также рассмотреть химическое равновесие [137]. Для этого необходимо определить список возможных химических элементов присутствующих в системе и какие химические реакции идут между ними. Так как изначально берется конденсированный диоксид церия $CeO_{2,0}$, то в газовой фазе могут присутствовать следующие компоненты: Ce, CeO, CeO_2 , O и O_2 . Таким образом в системе присутствует 6 компонентов: один в конденсированном и пять в газообразном состоянии. Между компонентами рассматривались следующие химические реакции:



где: (с) – обозначает конденсированное состояние вещества, (g) – обозначает газообразное состояние вещества. Реакция (9) – испарение конденсированного диоксида церия, реакции (10) и (11) – химические реакции в газовой фазе. При этом в расчет не брались реакции ионизации и возможное появление ионов в газовой фазе.

Химическое равновесие также, как и термодинамическое, имеет динамическую природу. В системе непрерывно идут химические реакции и одни элементы переходят в другие. Данный процесс удобно характеризовать скоростью химической реакции. Для реакции $\nu_1 AB \rightleftharpoons \nu_2 A + \nu_3 B$ скорость прямой реакции определяется как $\nu_1 = k_1[A]^{\nu_2}[B]^{\nu_3}$, а обратной $\nu_2 = k_2[AB]^{\nu_1}$, где ν_i - стехиометрические коэффициенты, $[X]$ - концентрация вещества X, k_i - константа скорости реакции. Химическое равновесие характеризуется постоянством концентраций веществ, участвующих в химических реакциях. Следовательно, в химическом равновесии скорости

прямой и обратной реакции равны $\nu_1 = k_1[A]^{v_2}[B]^{v_3} = k_2[AB]^{v_1} = \nu_2 \Rightarrow \frac{k_1}{k_2} = \frac{[AB]^{v_1}}{[A]^{v_2}[B]^{v_3}}$.

Отношение $\frac{k_1}{k_2}$ называется константой равновесия реакции и обозначается K , она характеризует возникающее в системе равновесие и зависит, с большой степенью точности, только от температуры. Если химическая реакция идет в газовой фазе, то концентрации веществ X могут быть заменены их давлениями. Тогда можно получить следующее выражение для газовой фазы:

$K(T) = \frac{[P_{AB}]^{v_1}}{[P_A]^{v_2}[P_B]^{v_3}}$, которое представляет собой закон действующих масс. Данное уравнение

является основным для нахождения состава пара. Записывая его для каждой реакции и добавив закон сохранения массы, можно получить систему уравнений, из которой возможно найти давления всех веществ в паре. Для рассматриваемой физической системы получаем следующую систему уравнений:

$$K_1 = P_{Ce} + P_O^2$$

$$K_2 = \frac{P_{Ce} + P_O}{P_{CeO}}$$

$$K_3 = \frac{P_{Ce} + P_O^2}{P_{CeO_2}}$$

$$P_O - 2P_{Ce} - P_{CeO} - P_{CeO_2} = 0$$

Константы равновесия для реакций (9) и (10) были взяты из базы данных «ИВТАНТЕРМО».

Для реакции (11) данных о константе равновесия нет. Тем не менее, константы равновесия могут быть найдены через изменение энтальпии ΔH_T и энтропии ΔS_T в результате химической

реакции: $R \ln K(T) = \Delta S_T - \frac{\Delta H_T}{T}$ где $\Delta H_T = \Delta H_0 + \int_0^T \Delta C_p dT$. Табличные значения функций $S(T)$,

$H(T)$ и $C(T)$ для $Ce(g)$, $CeO(g)$, $O(g)$ были взяты из базы данных «ИВТАНТЕРМО». Данные по $CeO_2(g)$ были взяты из работы [131]. Теплоемкость дается полиномами:

$$C_p = 37,7646 + 55,1209 \times 10^{-3} \cdot T - 57,1816 \times 10^{-6} \cdot T^2 + 21,2692 \times 10^{-9} T^3 - 2,6077 \times 10^5 T^{-2}$$

для диапазона 298,15 – 900 К

$C_p = 55.9864 + 2.90431 \times 10^{-3} \cdot T - 1.4361 \times 10^{-6} \cdot T^2 + 0.25254 \times 10^{-9} T^3 - 1.11908 \times 10^5 T^{-2}$ для диапазона 900 – 4000 К.

С использованием перечисленных теплофизических данных можно рассчитать константу равновесия для реакции атомизации (11).

Вопрос состава паров над конденсированным CeO_2 осложняется особенностями фазовых переходов в системе $\text{Ce} - \text{O}$. В работе [130] исследовались термодимические свойства и фазовые соотношения в системе церий – кислород.

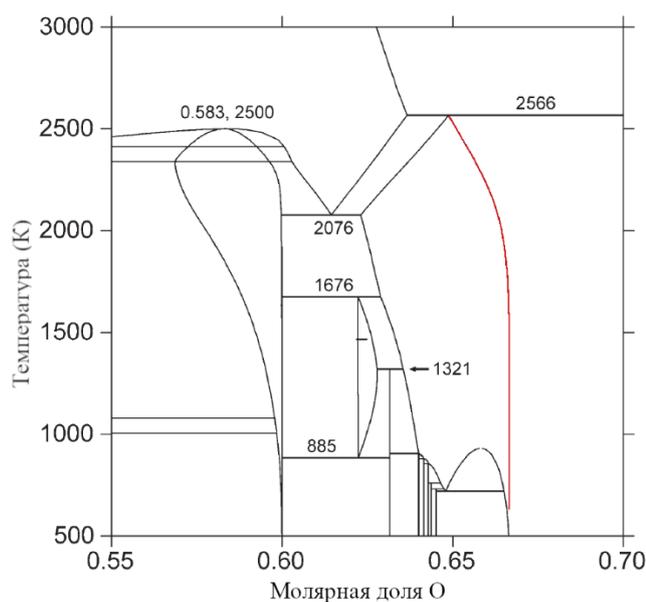


Рис. 3.13. Фазовая диаграмма диоксида церия при внешнем давлении $P=1$ атм [130].

Из модельной фазовой диаграммы [130] (рисунок 3.13), следует что природа плавления и испарения в данной системе неконгруэнтная, т.е. химический состав конденсированной и газовой фазы отличается. Согласно той же фазовой диаграмме, строго стехиометрический конденсированный $\text{CeO}_{2,0}$ при нагреве становится метастабильным. Равновесие в конденсированной фазе при этом смещается в гипостехиометрическую область обедненную кислородом ($\text{O}/\text{Ce} < 2.0$). Такая особенность поведения $\text{CeO}_{2,0}$ при нагреве приводит к увеличению давления кислорода и изменению равновесного состава паров.

Первоначально, расчет равновесного состава паров проводился для случая конгруэнтного испарения метастабильного CeO_2 , т.е. стехиометрия как конденсированной, так и газовой фазы принималась равной 2,0. Используя уравнения химического равновесия и известные теплофизические данные, был определен состав для смеси O , Ce , CeO , CeO_2 . Для этого, дополнительно, была рассчитана константа равновесия реакции атомизации для молекулы CeO_2 .

Результаты расчета представлены на рисунке 3.14. Видно, что большую часть паров состоит из молекул CeO_2 , что вполне ожидаемо в данном случае. Расчетные значения парциального давления CeO_2 хорошо совпадают с результатами экспериментов [129].

Далее был реализован расчет состава газовой фазы для случая неконгруэнтного испарения. Для температуры выше 2570 К равновесная стехиометрия газовой фазы известна из модельной фазовой диаграммы. Сдвиг стехиометрии конденсированной фазы происходит при температурах от 1900 К до 2570 К. Давление создаваемое уходящим при этом из конденсированной фазы кислородом можно найти по сдвигу, определенному из фазовой диаграммы. Для этого необходимо задать массу конденсированного CeO_2 и объем, занимаемый газовой фазой. В экспериментах по разработке метода плазменной сепарации планируется использовать примерно 250 г диоксида церия, объем вакуумной камеры при этом составляет 1 м³. Давление CeO_2 будет определяться балансом с конденсированной фазой, как и в случае, рассмотренном ранее. Опираясь на давление кислорода и уравнения баланса между паром и конденсатом можно рассчитать полный состав пара. Результаты расчета представлены на рисунке 3.15.

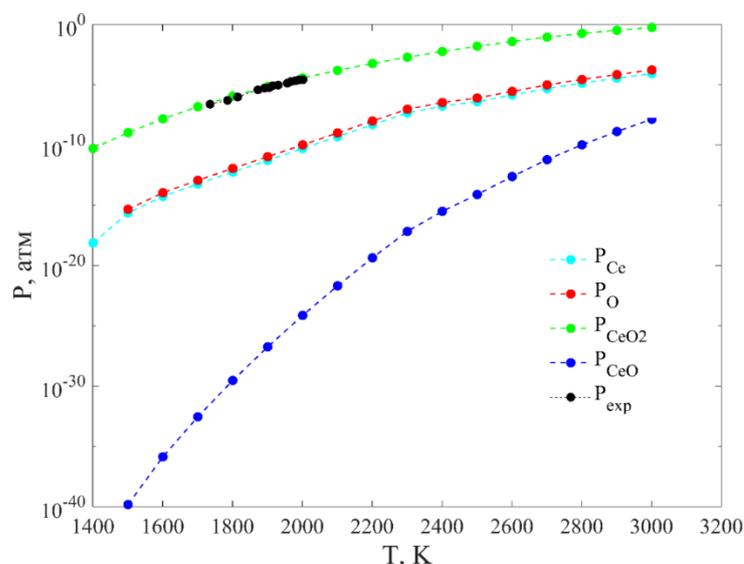


Рис. 3.14. Зависимость парциальных давлений компонент пара над CeO_2 в случае конгруэнтного плавления.

Из приведенных результатов видно, что обогащение газовой фазы кислородом приводит к сдвигу равновесия в сторону увеличения содержания молекул CeO и уменьшению доли молекул Ce . Содержание кислорода в случае неконгруэнтного испарения становится сравнимым с содержанием молекул CeO_2 , что может сильно сказываться на свойствах системы. Уменьшение содержания кислорода потенциально возможно. Например, предварительным нагревом тигля до 2600 К при продувании инертным газом.

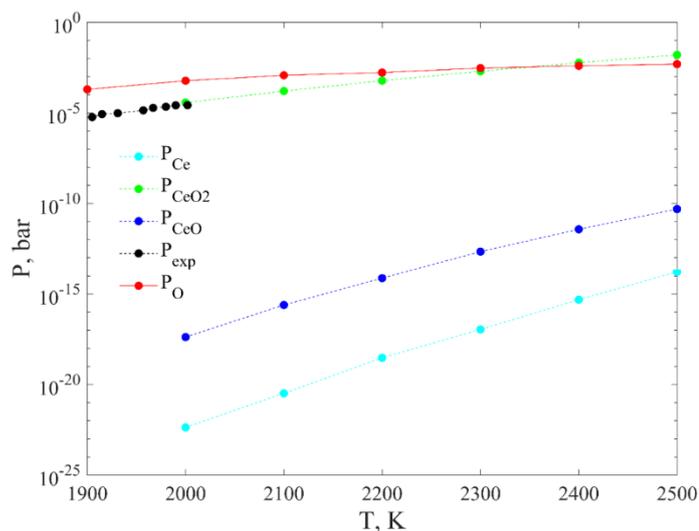


Рис. 3.15. Зависимость парциальных давлений компонент пара над CeO_2 в случае неконгруэнтного плавления.

Большая доля кислорода в газовой фазе может приводить к образованию отрицательных ионов, присутствие которых влияет на все кинетические процессы в плазме. Для проверки был проведен эксперимент, в котором масс-спектрометр функционировал в отрицательной полярности, т.е. фактически измерялся масс-спектр отрицательных ионов плазмы вакуумного дугового разряда с катодом из диоксида церия для токов в диапазоне токов 40-90 А. Сигнал отрицательных ионов был обнаружен только на минимальном токе в 30 А (рисунок 3.16). При варьировании ускоряющего напряжения в МС пики на сигнале сдвигались, что говорит о том, что они все же представляют реальный сигнал. Важно, что при этом горение разряда было нестабильно (увеличение амплитуд колебаний напряжения, колебания плазменного столба). Таким образом, отрицательные ионы кислорода как молекулярные, так и атомарные могут присутствовать в плазме.

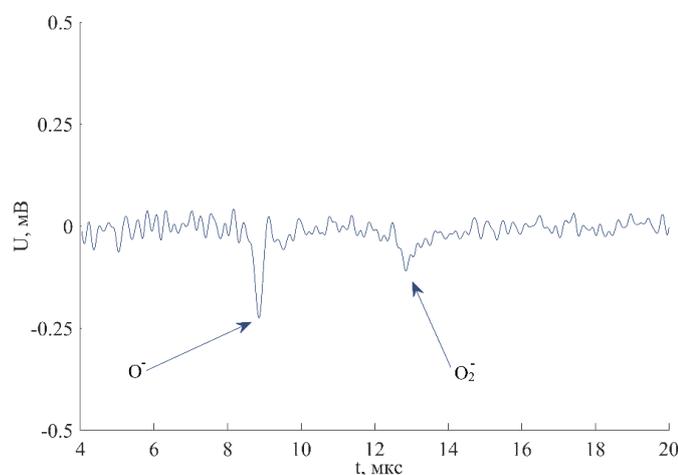


Рис. 3.16. Сигнал отрицательных ионов кислорода в массовом-спектре плазмы диффузной вакуумной дуги при токе 30 А

3.8. Выводы к третьей главе

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) меньше в режимах с больших напряжением 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 $U_d = 4$ В. Важным результатом 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: $U_d = 5-6$ В, температура гадолиниевого катода – 1920–1940 К (ток дуги 50 А). Изложенное делает ВД разряд перспективным кандидатом с точки зрения использования в качестве источника плазмы для реализации метода плазменной сепарации веществ и разработки технологии плазменной переработки ОЯТ.

Было проведено несколько серий экспериментов с целью исследования диффузной вакуумной дуги с подогреваемым катодом из диоксида церия. Было показано, что при неизменных токе разряда и температуре тигля напряжение на разрядном промежутке с течением времени снижается, возникают периоды нестабильного горения разряда, частота появления которых постепенно возрастает. Высказано предположение, что подобное поведение связано с расходом катода и изменением его микрорельефа. Было показано, что механизм замыкания тока в вакуумной дуге с катодом из диоксида церия может носить как диффузный, так и контрагированный характер. Одну из ключевых ролей в нестационарности разряда при этом играет микрорельеф поверхности катода. Снижение его влияния, вероятно, может быть достигнуто повышением однородности распределения температуры по поверхности катода. Проверка данного утверждения является предметом отдельного исследования.

Еще одна группа результатов относится к исследованию ионного состава плазмы. Было показано, что варьирование температуры тигля в диапазоне 2250 ± 50 К слабо влияет на ионный состав плазмы. Показано, что в случае катода из оксида церия в некоторых режимах горения разряда в плазме присутствуют не только атомарные (одно- и двукратные) ионы церия, но и молекулярные ионы CeO^+ и даже CeO_2^+ . Было показано, что в случае использования оксидного катода на параметры разряда существенно влияет не только сам материал катода, но и материал

тигля, в который он помещен. Так в плазме разряда были обнаружены ионы тугоплавкого материала тигля, причем их доля может быть значительна (до 40%). Данный результат демонстрирует важную роль процесса окисления тигля. Следует отметить, что кроме рассмотренных выше экспериментов с тиглями из молибдена и вольфрама, были опробован также тигель из тантала. Однако добиться устойчивого зажигания разряда на катоде из оксида церия в таком тигле не удалось.

Глава 4

Исследование влияния теплофизических параметров материалов катода на свойства диффузной вакуумной дуги с многокомпонентным катодом

Четвертая глава посвящена результатам экспериментального исследования диффузной вакуумной дуги с мультикомпонентным катодом, состоящим из смеси оксидного и металлического материалов. Подобный смесевой катод позволяет точнее моделировать процесс перевода ОЯТ в плазменное состояние, т.к. диоксид церия выступает, как одна из основных компонент ОЯТ – оксиды актинидов, а хром – как конструкционные материалы и металлические продукты деления актинидов. В данной части диссертационной работы затрагиваются как вопросы, касающиеся общих параметров вакуумной дуги таких как ВАХ, тепловой баланс катода, тип катодной привязки, так и вопросы, касающиеся параметров генерируемой плазмы, т.е. температуры и концентрации электронов, зарядового состава плазмы, величины среднего заряда. Последние два предмета исследований являются особенно важными в контексте вопроса о применении источника плазмы на основе диффузной вакуумной дуги в процессе плазменной переработки ОЯТ.

4.1. Источник многокомпонентной плазмы для задачи плазменной сепарации ОЯТ

Данная часть диссертационной работы посвящена изучению особенностей испарения и ионизации двухкомпонентной смеси из оксида и металла в условиях диффузной вакуумной дуги с горячим катодом. Важная ветвь развития плазменных источников – повышение эффективности испарения и ионизация многокомпонентных смесей. В отличие от широкой проработанности вопроса о функционировании вакуумных дуг на катодах из сплавов, в том числе их применения для задач масс-сепарации, данных о разрядах на расходуемых оксидных катодах и мультикомпонентных катодах, содержащих керамические компоненты, в литературе представлено явно недостаточно.

В качестве катодных материалов в данном исследовании использовались порошки хрома, диоксида церия и диоксида титана. Физические свойства данных материалов во многом определяют параметры генерируемых вакуумных дуг. Приведем справочные данные об основных их свойствах, относящихся к способности генерировать плазмообразующую среду, эмитировать электроны, а также проводить электрический ток, которые будут полезны в ходе анализа полученных в работе данных.

Катод вакуумной дуги в процессе горения разряда испаряется, поставляя среду, по которой протекает электрический ток. Для оценки максимальной концентрации плазмообразующей среды вблизи поверхности катода можно использовать данные о давлении насыщенных паров катода. На рисунке 4.1 представлены зависимости концентраций насыщенного пара от температуры компонентов используемых катодных материалов [76] [129]. Данные о давлении паров TiO_2 лежат в диапазоне, указанном штрихованной областью [94].

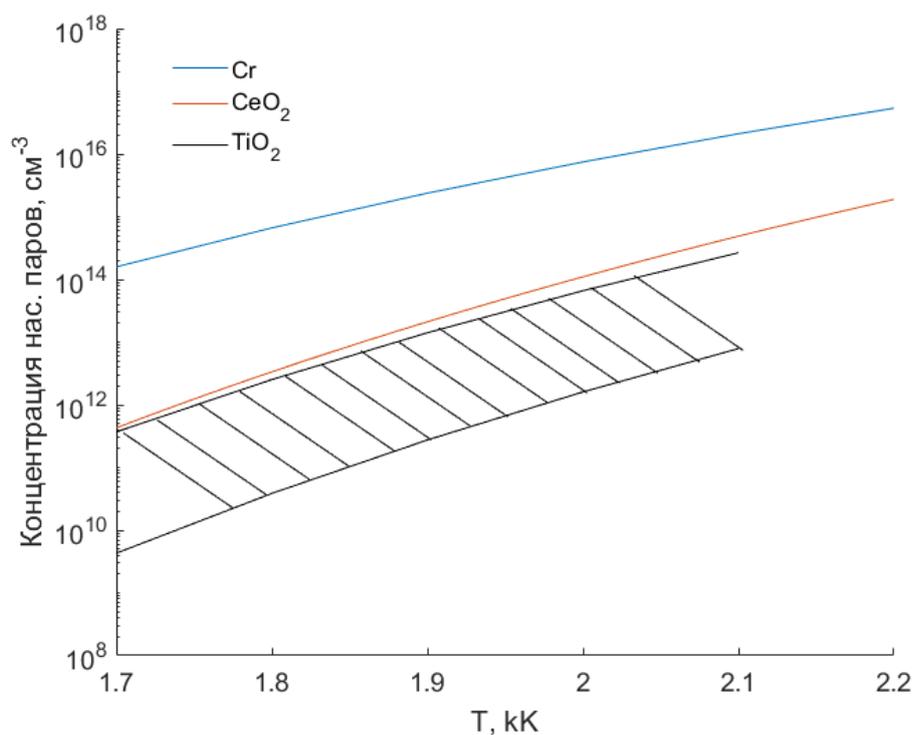


Рис. 4.1. Концентрация насыщенных паров катодных материалов

Согласно литературным данным, давление паров хрома на 1,5-2 порядка превышает давление оксидных материалов. В свою очередь давление паров CeO_2 несколько превышает давление паров TiO_2 . Концентрации компонентов испаряющейся смеси в газовой фазе отличаются от концентраций испаряющихся отдельно элементов незначительно, в случае больших разностей давлений насыщенных паров. Таким образом, можно заключить, при нагреве смесового катода до рабочей температуры, непосредственно перед зажиганием разряда, вблизи его поверхности пар состоит в основном из атомов хрома. Отметим, однако, что нагрев оксидов в бескислородной атмосфере приводит к их частичному восстановлению и изменению стехиометрии. Этот процесс контролировать в ходе экспериментов не представлялось возможным, поэтому последующий анализ результатов проводился на основе предположения, что стехиометрия при нагреве в основном сохранялась.

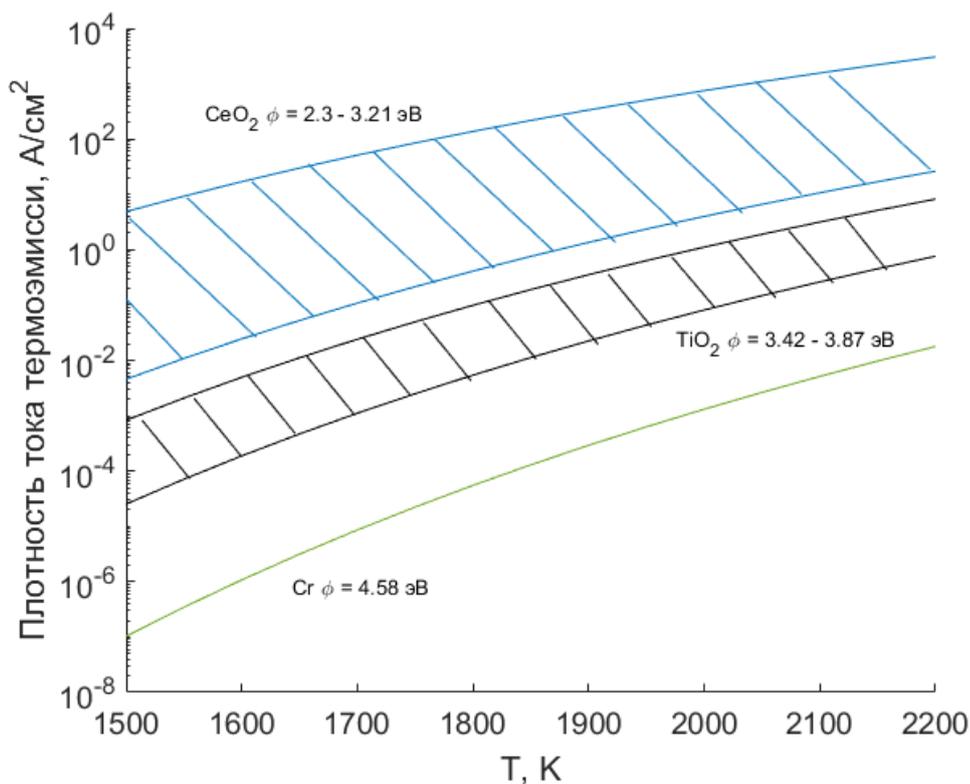


Рис. 4.2. Плотность тока термоэмиссии катодных материалов

На рисунке 4.2 представлены данные о плотности тока электронов термоэлектронной эмиссии для трех материалов, использованных в составе катодов [129] [76]. Соотношение величин работы выхода катодных материалов таково, что электронный ток термоэмиссии с диоксида церия на 2-4 порядка превосходит термоэлектронные токи с других материалов. Кроме этого, при площади катода порядка 2 см², ток термоэмиссии может сравниться с током дуги, то есть достигать величины в несколько десятков ампер, только для CeO₂.

Используемые оксиды в работе являются диэлектриками при нормальных условиях, ширина запрещенной зоны TiO₂ – 3,7 эВ, CeO₂ – 3,41 эВ. Их электрическое сопротивление понижается с ростом температуры. Cr – металлический материал, который способен проводить ток дуги при любой температуре.

Также важным является агрегатное состояние катодного материала. В жидком состоянии катод может активнее химически взаимодействовать с материалом тигля. В результате которого возможно плавление тигля при температурах, достигаемых в эксперименте. Кроме того, из-за смачивания может происходить вытекание материала катода из тигля. В таблице 4 приведены температуры плавления катодных материалов [129] [76] [94].

Материал	Cr	TiO ₂	CeO ₂
Температура плавления, К	2180	2140	2870

Таблица 4. Температуры плавления катодных материалов

4.2. Диффузная вакуумная дуга с катодом из CeO₂ и Cr

Данный раздел посвящен изучению параметров диффузной вакуумной дуги с горячим катодом, включающим в себя керамическую и металлическую компоненты. В качестве оксида используется CeO₂, а металлической добавкой является Cr. Важным для задачи плазменной сепарации ОЯТ является вопрос о возможности создания производительного источника плазмы на расходуемом многокомпонентном катоде, преимущественно оксидном.

Схема экспериментальной установки соответствует описанной в разделе 3.1. Исследование состояло из нескольких серий экспериментов. В первой серии рассматривался вопрос принципиальной возможности инициирования разряда, исследовалась ВАХ разряда, проводились оценки параметров плазмы методами оптической спектроскопии. Диоксид церия и хром брались в равной массовой пропорции при общей массе катода 6 г. Диоксид церия был в форме порошка, а хром в форме металлических хлопьев, их смесь предварительно спекалась при температуре около 1700 К в вакууме в течение часа.

Плазма, распространяющаяся в пространстве за анодом разряда, диагностировалась при помощи одиночного цилиндрического зонда Ленгмюра, с диаметром рабочей головки 0.6 мм, длиной 10 мм. Зонд располагался на высоте ~70 мм над анодом на оси разряда. Температура электронов, T_e , и концентрация ионов, n_i , определялись стандартным методом для бесстолкновительного случая [138]. При вычислении концентрации тяжелых заряженных частиц по насыщению ионной ветви вольтамперной характеристики зонда предполагалось, что на него в основном приходят однозарядные ионы хрома. Определенную описанным образом концентрацию, мы будем называть эффективной. Если в действительности плазма содержит преимущественно ионы более тяжелого церия, тогда вычисленная n_i занижена в 1.6 раза.

ДВД разряд на смешанном расходуемом катоде CeO₂+Cr был успешно реализован в диапазоне токов I от 30 до 110 А, которому соответствовал диапазон напряжения дуги $U = 6-11$ В. Температура тигля, T_c , менялась от 1950 до 2250 К. Проводились эксперименты как с фиксированным током разряда, варьируя T_c , так и с фиксированной T_c при варьируемом токе. Рисунок 4.3 представляет типичную ВАХ дуги при фиксированной температуре тигля (приведены данные для $T_c = 2050$ К). Для сравнения на рисунке 4.3 также представлены ВАХи диффузных вакуумных дуг с катодами из чистого хрома [62] и оксида церия [93]. Согласно

приведенным данным ВАХ разряда со смешевым катодом немонотонна, напряжение имеет слабо выраженный минимум внутри диапазона 40-70 А.

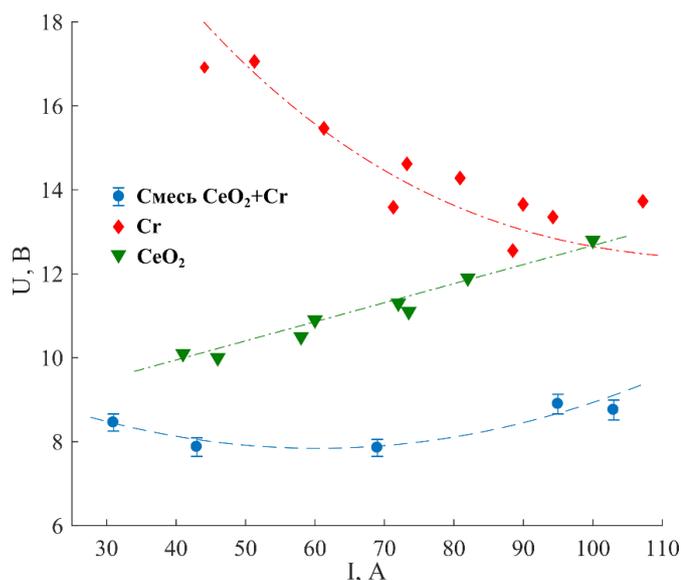


Рис. 4.3. ВАХи диффузных вакуумных дуг на катодах из CeO₂ и Cr. Mixed cathode of CeO₂+Cr (T_c = 2050 K), cathode of Cr (T_c = 1800-1950 K) [62], cathode of CeO₂ (T_c = 2300 K) [93].

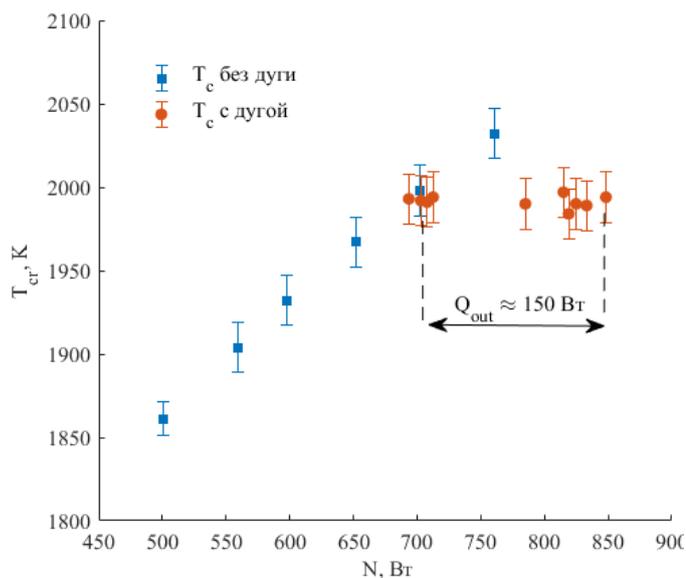


Рис. 4.4. Режимы работы катода с отрицательной мощностью, поступающей на него из плазмы. I = 30-95 А.

Исследуя тепловой баланс катода путем сравнения мощности ЭЛП, необходимой для поддержания одной и той же температуры в отсутствие разряда и при горящей дуге, мы обнаружили существование режимов, при которых мощность, поступающая в катод из плазмы, является отрицательной (Рисунок 4.4). Другими словами, в этих режимах дуга охлаждала катод. Величина мощности, отдаваемой катодом плазме, Q_{out}, при токе 30 А и температуре катода 2000 К могла достигать 150 Вт.

Результаты сравнения температуры электронов T_e , полученной зондовым методом и методом относительных интенсивностей спектральных линий для режимов разряда с разными токами дуги и при постоянной температуре тигля $T_c = 2000$ К показаны на рисунке 4.5. Данные рисунка демонстрируют достаточно хорошее совпадение измеренных энергий электронов. В целом при переходе между разными токами T_e в пределах погрешности практически не изменяется и составляет около 0,5 эВ.

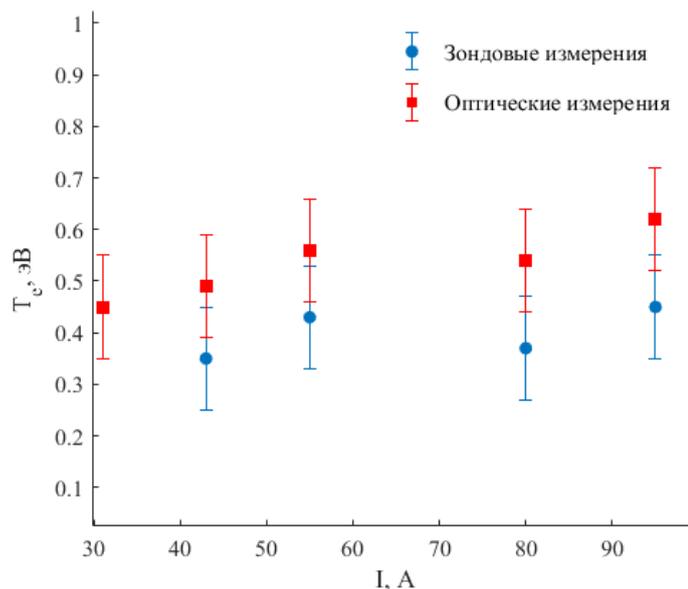


Рис. 4.5. Температуры электронов плазмы в зависимости от тока разряда, $T_c = 2000$ К.

Основываясь на данных диагностики T_e оптическим методом мы оценили концентрацию атомов хрома в основном состоянии по самопоглощению резонансных линий. В эксперименте при фиксированном токе $I = 80$ А и изменяющейся температуре T_c от 1950 до 2200 К в точке наблюдения над выходным отверстием тигля она возрастала от 3×10^{12} см⁻³ до 1×10^{13} см⁻³. При этом эффективная концентрация ионов за анодом, измеренная зондом, возрастала от 6×10^{10} до 12×10^{10} см⁻³.

Во второй серии экспериментов использовались катоды с другим массовым соотношением компонентов CeO_2 и Cr (4:1, 1:1 и 1:4, 3:7). Размер частиц в порошках составлял 10-100 мкм. Смесь порошков прессовалась ручным методом и спекалась перед зажиганием разряда в течение часа в вакууме при температуре около 1750 К.

В ходе экспериментов методами ВМС исследовался ионный состав плазмы, методом конденсационного зонда изменялся средний заряд плазмы. Последнее позволяло оценить степень ионизации вылетающей за анод плазмы. Характерное время экспозиции зонда в плазменном потоке дуги составляло около 5 минут. Зонд вводился в плазменный поток за анодом дуги на высоте около 40 мм над ним.

Использовался катод, приготовленный из смеси порошков CeO_2 и Cr , которая закладывалась в молибденовый тигель в массовом соотношении 3:7. Исследования ионного состава плазменного потока проводились при токах дуги в диапазоне от 40 до 90 А и температуре катода 2,1 – 2,2 кК. Измерения показали, что несмотря на варьирование напряжения дуги путем изменения температуры катода при фиксированном токе, при варьировании тока дуги до 90 А, ионный состав плазмы практически не изменяется. В составе плазменного потока присутствуют только ионы Cr^+ ($m/z = 52$) и Ce^+ ($m/z = 140$). Соотношение площадей под массовыми пиками показывает, что ионы хрома составляют более 90% состава потока. Молекулярные ионы в составе не наблюдались. Зарегистрированный сигнал ионных пиков соответствует концентрации ионов хрома на уровне $(1-2) \times 10^{10} \text{ см}^{-3}$. Данные о составе плазмы в зависимости от тока разряда при близких средних температурах катода приведены в таблице 5.

U, В	I, А	T, К	Площадь массового пика Cr^+ , %	Площадь массового пика Ce^+ , %
7,2	66	2223	96	4
10,7	42	-	100	0
5,6	42	2254	99	1
7,7	92	2268	97	3
7,9	82	2264	93	7
7,6	67	2259	97	3
7,4	56	2258	98	2
6,6	42	2233	98	2
10,5	55	2228	97	3

Таблица 5. Распределение содержания ионов в потоке плазмы

Ближе к концу эксперимента (~ 30 минут после зажигания дуги) доля ионов церия в потоке увеличивается, по причине того, что в составе катода падает количество хрома, их доля может составлять более половины всех ионов, содержащихся в потоке плазмы. В составе плазмы появляются также и ионы CeO^+ ($m/z = 158$).

Была проведена серия экспериментов, в которой исследовалась зависимость среднего заряда плазменного потока дуги с катодом из смеси порошков от тока разряда. Средний заряд определялся методом конденсационного зонда на трех токах - 42, 66 и 93 А. Также для сравнения проводился эксперимент, в котором измерялся средний заряд плазмы дуги с катодом, смешанным из порошка CeO_2 и электролитического Cr в виде чешуек. Данные о среднем заряде приведены в таблице 6. Данные анализа спектров излучения плазмы свидетельствовали, что в излучении присутствовали, в основном, линии частиц хрома. Поэтому при вычислении среднего заряда принималось, что на конденсационном зонде осаждается в основном хром. В этих экспериментах в течении 15 минут ток и напряжение разряда поддерживались неизменными. Из-за расходования материала катода напряжение разряда со временем возрастало, и для его стабильности приходилось повышать температуру тигля для сохранения потока испаряющихся с катода частиц на одном и том же уровне. Типичная подстройка температуры составляла около 50 К. В этих условиях измерялась скорость эрозии материала катода методом взвешивания тигля до и после эксперимента.

Тип катода	Порошки CeO_2 и Cr 1:1	Порошки CeO_2 и Cr 1:1	Порошки CeO_2 и Cr 1:1	Смесь порошка CeO_2 и чешуек Cr 1:1
Ток дуги, А	42	66	93	92
Напряжение, В	7,5	7,2	8,0	7,9
Средний заряд, е	0,29	0,46	0,57	0,75
Скорость испарения, мг/с	0,80	0,84	1,50	1,70
Коэфф. электропереноса, шт. ат/ шт. эл.	0,035	0,024	0,030	0,034

Таблица 6. Средний заряд ионов плазмы дуги на катоде из смеси CeO_2 и Cr

Данные таблицы 6 показывают, что увеличение тока дуги позволяет увеличить средний заряд ионов потока плазмы, и соответственно степень ее ионизации. Максимальный достигнутый в опытах средний заряд находился в диапазоне 0,6-0,8 е.

По данным о скорости эрозии катода был оценен коэффициент электропереноса, то есть отношение число испаренных атомов с поверхности катода к числу элементарных зарядов, прошедших через него. Так на всех измеренных токах коэффициент электропереноса был в диапазоне 0,024-0,035 ат/эл. Такое значение параметра скорее характерно для дуги на катоде из

CeO_2 (0,02-0,06), чем для катода из Cr (0,08-0,12), несмотря на то, что в спектре излучения плазме были обнаружены преимущественно линии атомов и ионов хрома.

При использовании смеси порошков CeO_2 и Cr в качестве катода в сравнении с катодом из смеси порошка и чешуек удалось реализовать варьирование напряжением разряда путем изменения мощности подогрева катодного тигля. В предыдущих экспериментах с чешуйками Cr данный эффект не наблюдался. Вероятно, проявление этого эффекта стало возможным по причине того, что при использовании порошка Cr произошло ограничение его поступления с катода в разряд. Чешуйки же имели большую площадь, с которой могло поступать больше хрома в разрядный промежуток. На рисунке 4.6 представлены измеренные зависимости напряжения разряда от мощности ЭЛП при разных токах дуги для катодной смеси с массовым соотношением 4:1 (Cr и CeO_2 соответственно).

Согласно наблюдениям, диапазон изменения напряжения был тем шире, чем ниже был ток разряда. Так на токе 90 А удалось изменять напряжение дуги в пределах 2 В, когда на токе 40 А диапазон варьирования составлял уже 12 В. Такое поведение разряда характерно для дуги на катоде из гадолиния, в которой высока доля электронного тока термоэмиссии с катода и удается путем варьирования мощности подогрева тигля влиять на температуру электронов плазмы и на реализующийся ионный состав.

В ходе опытов исследовались тепловые режимы работы катода, то есть определялось количество тепла, передаваемого от плазмы катоду во время существования разряда. Эти данные позволяют оценивать роль электронной эмиссии в процессе протекания тока через катод и долю ионного тока на катоде. В ходе изучения разряда регистрировалась температура тигля в зависимости от подведенной мощности ЭЛП в двух случаях: при горении дуги и при ее отсутствии. В проведенных ранее опытах на смеси порошка диоксида церия и чешуек хрома удавалось наблюдать только отдельные режимы существования дуги, в которых обнаруживался эффект охлаждения катода. В опытах на смеси порошков зарегистрирован переход от режима нагрева катода дугой к охлаждению, который проиллюстрирован на рисунке 4.7.

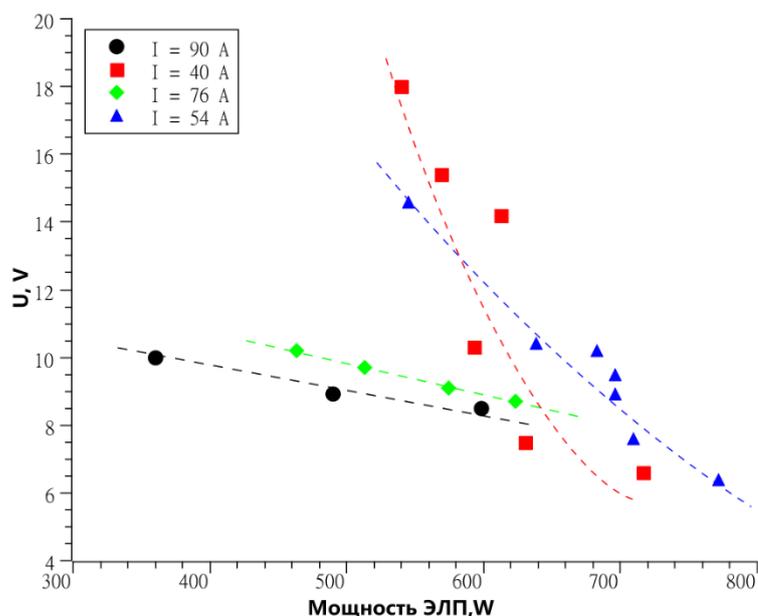


Рис. 4.6. Зависимости напряжения дуги от мощности ЭЛП при разных токах

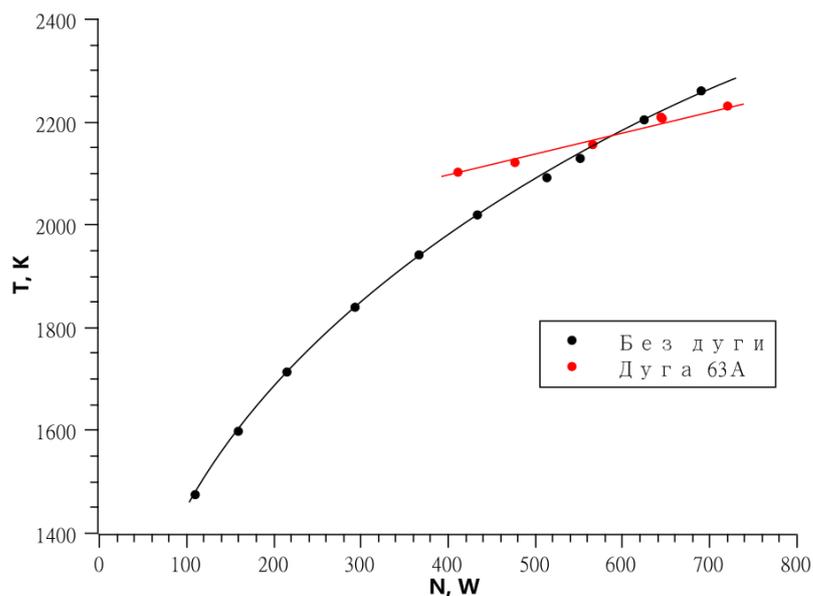


Рис. 4.7. Температура тигля с дугой и без дуги в зависимости от мощности ЭЛП.

Данные на рисунке 4.7 показывают, что при малых мощностях нагрева ЭЛП температура тигля в дуге оказывается выше, чем в отсутствии разряда и наблюдается эффект разогрева катода дугой. При увеличении температуры тигля и мощности нагрева ЭЛП температура тигля в какой-то момент становится ниже при взаимодействии с разрядом, чем без него. Это свидетельствует о доминировании потерь энергии катодом за счет ее уноса электронами термоэмиссии и испаряющимися атомами. Такой переход между двумя тепловыми

режимами работы катода наблюдался в дуге с термоэмиссионным катодом из гадолиния. По оценкам из рисунка 4.7 максимальная мощность в режиме нагрева катода дугой составляла ~150 Вт, а максимальная мощность охлаждения была ~100 Вт.

Исследовались параметры плазмы, вытекающей в пространство за анодом. Измерялась температура электронов в зависимости от напряжения разряда при разных токах. Эксперименты проводились на катоде из смеси порошков в соотношении: 1 доля CeO_2 и 4 доли Sr . На рисунке 4.8 представлены полученные данные о том, как ведет себя энергия электронов в плазменном потоке при варьировании напряжения путем изменения мощности ЭЛП.

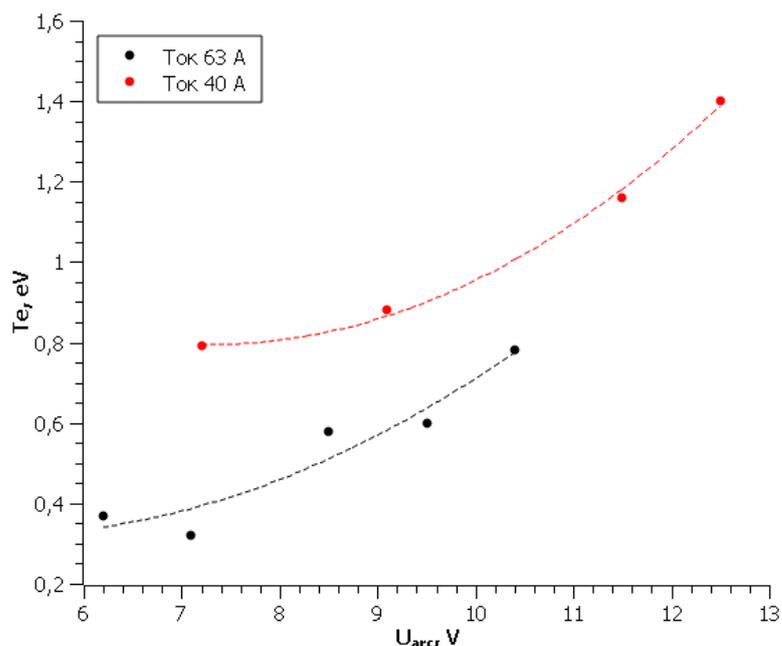


Рис. 4.8. Зависимость температуры электронов в пространстве за анодом от напряжения дуги при токах 63 и 40 А.

Данные рисунка свидетельствуют о том, что на смешанном катоде и напряжением разряда и температурой электронов плазмы возможно управлять. Так удалось варьировать температуру электронов в диапазоне 0,8-1,4 эВ на токе 40 А и в диапазоне 0,4-0,8 эВ на токе 63 А. Эти результаты являются предпосылкой к возможности управления зарядовым составом образующегося плазменного потока и степенью ионизации.

Также в экспериментах измерялась концентрация ионов плазмы за анодом в зависимости от температуры тигля при двух токах. Данные о зарегистрированных концентрациях представлены на рисунке 4.9.

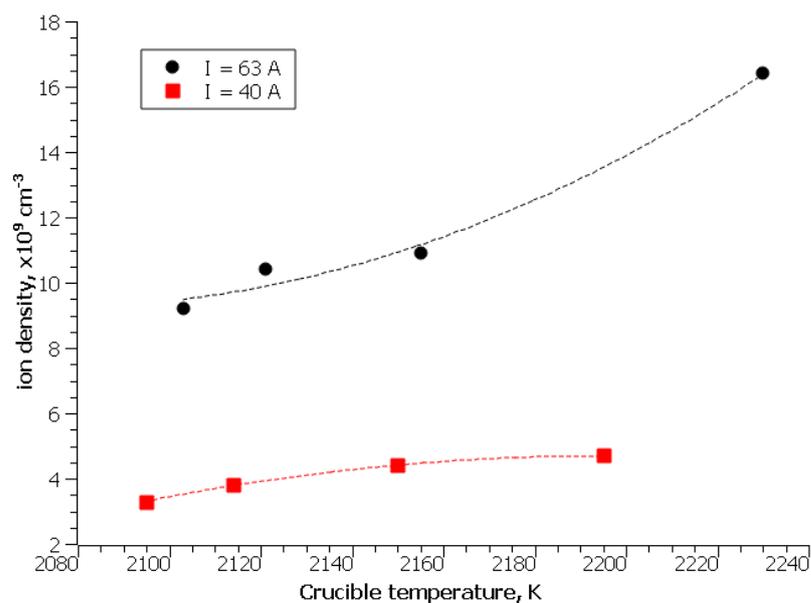


Рис. 4.9. Зависимость концентрации ионов от температуры катода для токов 63 и 40 А

Согласно измерениям, значения концентрации ионов возрастают более чем в два раза при увеличении тока от 40 А до 63 А. Эти данные согласуются с результатами определения среднего заряда ионов потока плазмы. Увеличение температуры катода также приводит к росту концентрации. На величину концентрации ионов влияют два фактора – температура электронов и концентрация нейтралов. При увеличении температуры катода растет концентрация плазмообразующей среды, однако, с другой стороны, увеличение температуры возможно при увеличении мощности ЭЛП, что в свою очередь приводит к падению напряжения разряда и, соответственно, энергии электронов. Учитывая это, можно сказать, что на токе 40 А доминирующим фактором, приводящим к росту концентрации ионов, является увеличение концентрации среды. На токе 63 А концентрация ионов растет слабее, это связано с тем, что рост концентрации среды компенсируется падением температуры электронов.

4.3. Диффузная вакуумная дуга с катодом из $\text{TiO}_2 + \text{Cr}$

Вторая катодная смесь, состоящая из порошков диоксида титана и металлического хрома, исследовалась при двух массовых соотношениях компонентов — 1:1 и 3:7. Основная часть опытов проводилась с катодной смесью, в которой преобладал металлический хром

В первых экспериментах использовалась смесь 1:1. В используемый тигель помещалось порядка 7 г рабочего вещества. Дуговой разряд инициировался при температуре тигля $\approx 1970 \text{ K}$. При более низких температурах пробоя промежутка не происходило. Интенсивное испарение

хрома приводило к запылению диагностических окон вакуумной установки, что мешало дальнейшему корректному измерению температуры при помощи пирометра. Появлялась опасность перегрева катода до температур плавления. Разряд в данной конфигурации катода был получен при токе 50 А и мощностях ЭЛП в диапазоне 300-430 Вт. Варьирование мощности подогрева тигля не влияло на напряжение разряда, оно было постоянным на уровне 11,3 В, однако менялся внешний вид катодной струи. При большей мощности струя плазмы выглядела относительно однородно и двигалась слабо, она изображена на рисунке 4.10 а. При понижении мощности и соответственно средней температуры катода на ободке тигля наблюдались более подвижные катодные пятна (рисунок 4.10 б). Последующее увеличение мощности нагрева до границы указанного выше диапазона вновь приводило к образованию равномерной катодной струи.

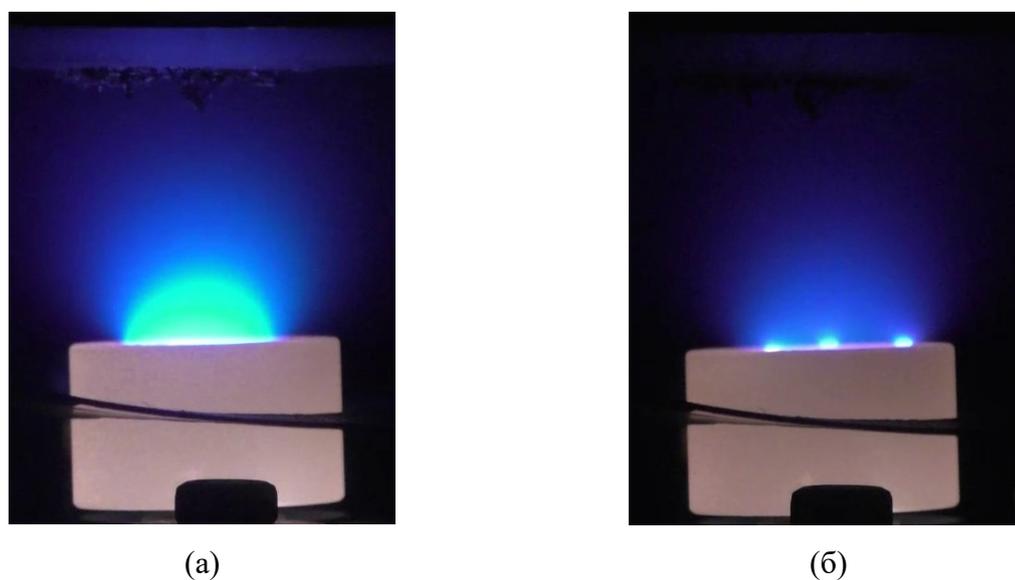


Рис. 4.10. Внешний вид плазмы вакуумной дуги на катоде из смеси Cr и TiO₂ при относительно высокой температуре катода (а) и относительно низкой температуре катода (б)

При увеличении мощности нагрева более 450 Вт температура катода возрастала настолько, что он начинал плавиться и выплескиваться из тигля. Заметим, что при плавлении катода из чистого хрома, его выплеска из тигля не наблюдается.

Анализ спектров излучения плазмы на выходе из катодного тигля показал присутствие в ней атомов и однозарядных ионов Cr и Ti. То есть все тяжелые компоненты катода поступали в плазму.

Для уменьшения выплеска катода при возможном его перегреве и защиты системы подогрева тигля от расплава состав катодной смеси был изменен, количество закладываемого оксида титана было уменьшено, использовалась смесь с массовым соотношением 3:7.

Разряд на смеси TiO_2 и Cr в массовом соотношении 3:7 изучался более подробно. Подготовка катода и инициация разряда осуществлялись по той же процедуре. Пробой разрядного промежутка происходил при температуре тигля выше 1970 К. При этой температуре концентрация паров хрома над поверхностью катода находится на уровне 10^{15} - 10^{16} $см^{-3}$. Разряд был получен в диапазоне токов от 30 до 90 А, при мощности ЭЛП в диапазоне 420-500 Вт. Измерения показали, что средняя температура тигля менялась в диапазоне 1900-2050 К.

Проводилась видеорегистрация поверхности катода. Фотографии разряда сбоку, и поверхности катода показаны на рисунке 4.11.

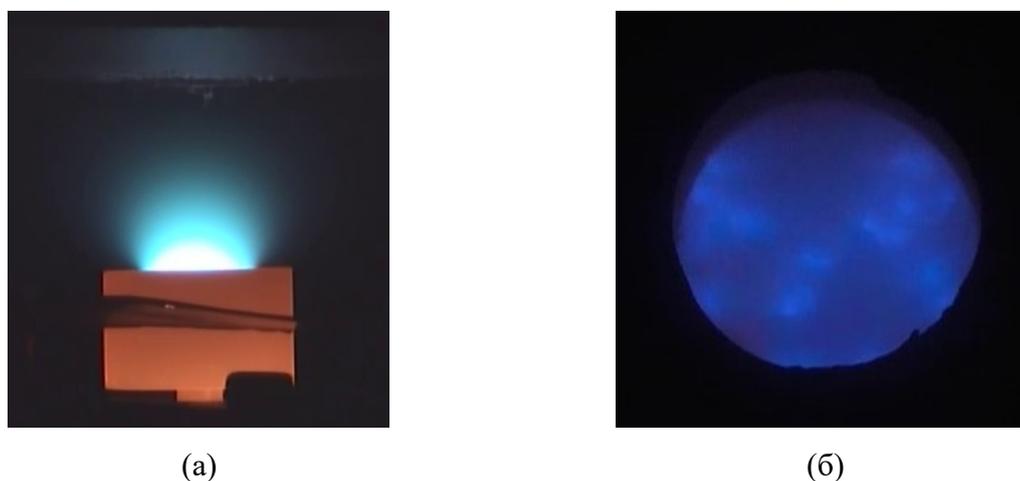


Рис. 4.11. Фотография разряда сбоку (а), фотография поверхности катода (б) при токе дуги 50 А, напряжении 12 В.

Одновременные наблюдения за разрядом с разных ракурсов показали, что несмотря на относительно симметричный внешний вид струи плазмы, вырывающейся из катода, его поверхность испещрена быстро движущимися катодными пятнами. Осциллографирование напряжения разряда с разверткой 50 мс показало отсутствие существенных колебаний. Выплеск катодного материала в виде капель также не наблюдался. Измеренная методом взвешивания средняя скорость испарения катода находилась на уровне 6-8 мг/с. Была измерена вольтамперная характеристика разряда, она изображена на рисунке 4.12.

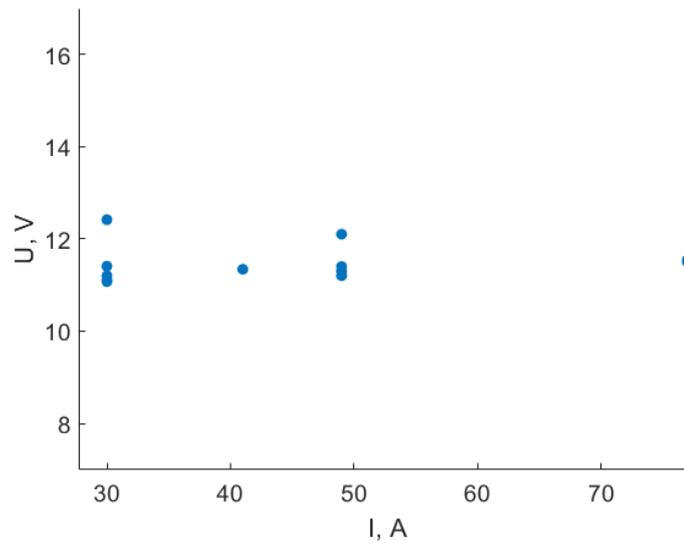


Рис. 4.12. ВАХ дуги на катоде из смеси Sr и TiO₂

Повышение тока дуги от 30 до 80 А практически не приводило к изменению разрядного напряжения, оно находилось на уровне 11,8 В. На напряжение разряда влияло время экспозиции катода в разряде. Как правило через 15-20 минут после начала эксперимента напряжение начинало резко возрастать вследствие расходования катодного материала.

При токе дуги 30 А, была измерена зависимость напряжения горения разряда от мощности подогрева тигля, она изображен на рисунке 4.13. Напряжение дуги практически не изменялось при увеличении мощности внешнего подогревателя тигля.

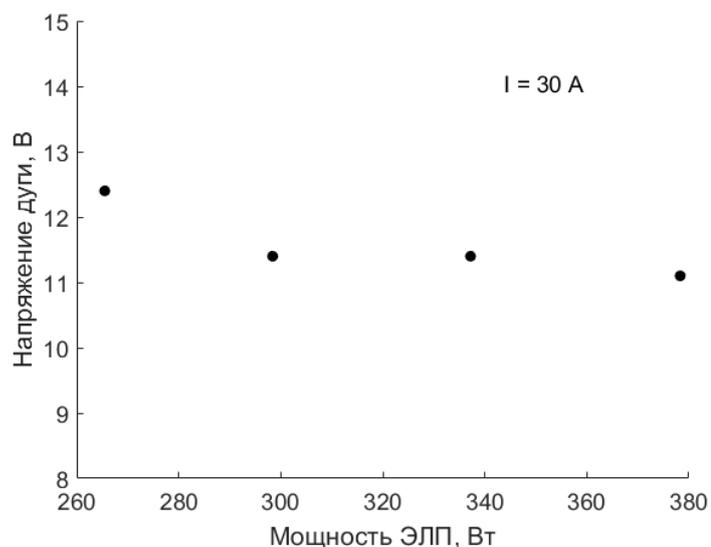


Рис. 4.13. Зависимость напряжения дуги от мощности подогрева тигля

Измерения температуры тигля при его нагреве в отсутствие дуги и при горении разряда позволили оценить мощность, поступающую из плазмы в катод. Измеренные зависимости представлены на рисунке 4.14.

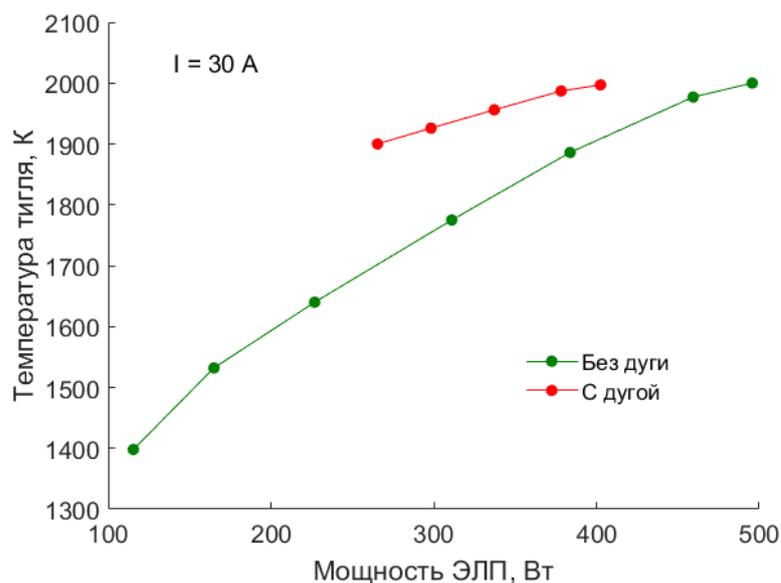


Рис. 4.14. Температура тигля в зависимости от мощности ЭЛП во время работы разряда и при нагреве в вакууме

Из рисунка видно, что при одной и той же мощности ЭЛП температура тигля отличается при горении разряда и при его отсутствии. Дополнительный нагрев дугой может увеличивать среднюю температуру тигля на величину до 200 К. Для обеспечения одной и той же средней температуры тигля с дугой и без нее, согласно рисунку, плазме необходимо сообщать от 100 до 150 Вт тепловой мощности при токе 30 А. Чем ниже температура тигля, тем больше мощности из плазмы требуется для поддержания разряда. Подобные результаты справедливы и для других токов разряда. На токе 80 А поток тепловой мощности из плазмы достигал 200 Вт. Зафиксированный в экспериментах вольт-амперный эквивалент мощности, поступающей из плазмы в катод, находился в диапазоне 2,5-5,0 В.

Приведем параметры потока плазмы дуги на смеси TiO_2 и Сг в массовом соотношении 3:7. В экспериментах измерялся средний заряд потока плазмы, выходящего в пространство за анодом, методом конденсационного зонда. Измерения производилась для двух токов разряда 50 и 90 А. Измеренный средний заряд рассчитывался в предположении, что ионный ток обеспечен только однозарядными ионами хрома. Приемная площадка конденсационного зонда имела площадь 1,3 см^2 . Средний ионный ток, собираемой этой площадкой составлял $\sim 30 \text{ мА}$ при токе дуги 50 А и $\sim 60 \text{ мА}$ при токе дуги 90 А. Эти значения ионного тока насыщения на конденсационный зонд

позволяют оценить концентрацию ионов плазмы на выходе из анода, она составляла $(2-4) \times 10^{12}$ см⁻³. Измеренные средний заряд составлял 0,18 и 0,21 соответственно для токов 50 и 90 А. Полученные значения показывают, что степень ионизации плазмы не превосходила 20 %. Для измерения температуры электронов плазмы использовался одиночный зонд Ленгмюра. Измерения параметров плазмы проводились для трех разных токов разряда, а также при фиксированном токе и разных температурах тигля. Данные измерений представлены в таблице 7.

I, А	T, К	T _e , eV	n _i , см ⁻³
49	2018	0.48	4.80E+10
77	2020	0.44	1.12E+11
30	1987	0.55	1.50E+10
30	1956	0.52	1.70E+10
30	1926	0.48	1.50E+10

Таблица 7. Параметры плазмы, измеренные одиночным зондом

Повышение тока разряда увеличивает концентрацию плазмы, на токе 77 А она достигает величины 10^{11} см⁻³ на расстоянии 13 см от анода. На токе 30 А концентрация падает на порядок. Изменение температуры катода практически не влияет на концентрацию плазмы.

Качественный анализ состава плазмы проводился путем анализа спектров ее излучения на выходе из тигля. Большое количество частиц разных сортов принимает участие в процессе возбуждения, поэтому в спектре большинство линий перекрываются, однако выделить участки спектра, соответствующие только одному компоненту плазмы, оказывается возможным. Анализ спектров излучения плазмы дуги на катоде из смеси TiO₂ и Cr в массовом соотношении 3:7 показывает, что атомы и однозарядные ионы Cr и Ti присутствуют вне зависимости от тока разряда.

С помощью времяпролетного МС были произведены измерения ионного состава плазмы, вылетающей в пространство за анодом. Состав исследовался на токах дуги 30, 41, 49 и 77 А. В основном плазма была представлена ионами хрома и титана. Типичный масс-спектр представлен на рисунке 4.15.

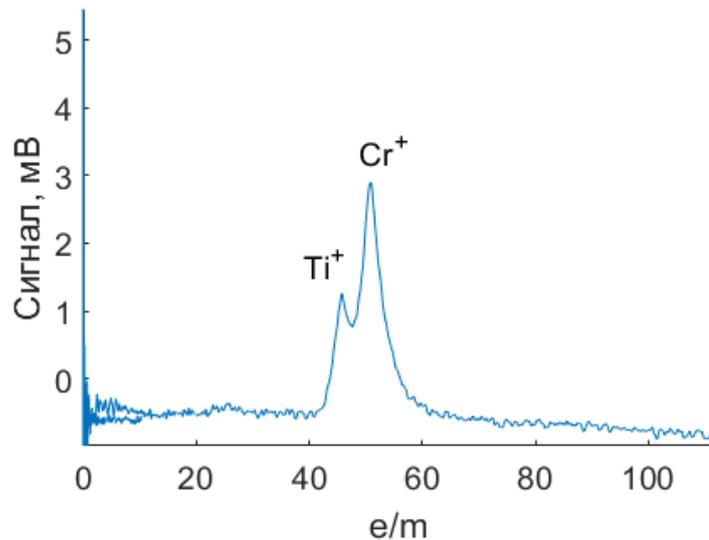


Рис. 4.15. Масс спектр ионов плазмы вакуумной дуги на катоде из смеси TiO_2 и Cr

Изменение тока разряда преимущественно меняло интенсивности сигналов массовых спектров, другие ионы в составе плазмы не обнаруживались. Доля двухзарядных ионов в потоке по оценкам не превышала 5%. На токе 30 А амплитуда сигнала массового пика иона Cr^+ на порядок превосходила интенсивность Ti^+ . При увеличении тока до 41 и 49 А интенсивность сигнала Ti^+ значительно возросла и достигала половины интенсивности пика Cr^+ (рисунок 4.15). Дальнейшее увеличение тока до 77 А увеличивало общую амплитуду массовых пиков, однако доля ионов титана по отношению к ионам хрома не изменялась.

4.4. Условия реализации диффузной формы вакуумной дуги

В работе были исследованы вакуумные дуги на катодах, содержащих оксидные компоненты: диоксид церия, смесь диоксида церия с хромом и смесь диоксида титана с хромом. Проведенные эксперименты показали существенное различие в характере функционирования разрядов, а также в свойствах генерируемой ими плазмы. На катоде из чистого диоксида церия было показано, что разряд может существовать в двух различных формах привязки тока на катоде – контрагированной и диффузной. Эти формы горения дуги по-отдельности наблюдались и на катодах, представленных в виде смеси.

Согласно зафиксированным данным, разряд на смеси CeO_2+Cr стабильно существовал при средней температуре катода > 2100 К. Катодные пятна при этом не наблюдались. Это, вероятно, является следствием того, что в составе катода присутствовал компонент (CeO_2),

который при данной температуре мог обеспечить протекание тока дуги за счет достаточной интенсивности электронного тока термоэмиссии без образования областей контракции тока и дополнительного разогрева катода в них. Катод дуги из смеси TiO_2+Cr не имел в своем составе источника электронов термоэмиссии, способного поддержать ток разряда, который бы замыкался по всей его поверхности (см. рисунок 4.11). Дуга на смеси TiO_2+Cr существовала при более низкой средней температуре катода < 2100 К, и на поверхности катода наблюдались катодные пятна, которые ее локально разогревали, интенсифицируя потоки эмитируемых частиц.

Наблюдаемые особенности привязки тока разрядов на смешевых катодах объясняют зарегистрированные в опытах данные. В разряде на смеси CeO_2+Cr наблюдался эффект влияния температуры катода на напряжение дуги, что влияло и на температуру электронов плазмы, присутствовал эффект эмиссионного охлаждения катода. В разряде на смеси TiO_2+Cr напряжение не зависело от значения мощности подогрева тигля, также не менялись параметры плазмы, во всех режимах дуга вносила дополнительную энергию в катод. Изменение температуры катода в отсутствие катодных пятен значительно влияет на ток термоэмиссии и на распределение между долями ионного и электронного токов. В случае контрагированной привязки тока дуги температура катода в пятне значительно выше средней температуры, поэтому реакция напряжения на дополнительный нагрев в этом случае практически отсутствует.

Отличие в типах привязки тока на катоде выразилось и в измеренных параметрах плазменных потоков. В случае смеси CeO_2+Cr средний заряд потока плазмы в несколько раз превосходил по величине измеренный в дуге на катоде из TiO_2+Cr (0,8 против 0,2). Кроме среднего заряда отличался и ионный состав плазменных потоков. В дуге на катоде из CeO_2+Cr диоксид церия в основном является источником термоэлектронов, а хром выступал генератором плазмообразующей среды. Поток ионов плазмы дуги был представлен преимущественно ионами Cr^+ , ионы церия появлялись в потоке только ближе к концу эксперимента, когда хром в составе катода заканчивался. В случае использования катода TiO_2+Cr локализация тока дуги в катодных пятнах способствовала попаданию в плазмообразующую среду обоих компонент катодного материала за счет более высокой температуры поверхности катода в пятне. Ионы титана и хрома одновременно присутствовали во всех исследованных режимах работы разряда. Повышение тока дуги усиливало присутствие ионов титана в плазменном потоке. Отметим, что несмотря на контрагированный характер привязки тока на катоде, плазме дуги отсутствовали крупные капли катодного материала, характерные для такого разряда, вероятно это обусловлено сравнительно высокой средней температурой катода [64].

На основе анализа полученных данных могут быть сформулированы следующие выводы по генерации плазмы оксидного керамического материала в составе катода вакуумной дуги, в

том числе смесового. Получения плазмы керамического материала с высокой термоэмиссионной способностью (например, CeO_2) возможно при использовании его в качестве катода вакуумной дуги как единственного компонента. Необходимым условием является поддержание температуры катода, при которой термоэмиссионный ток разряда будет сопоставим с полным током дуги, а давление насыщенных паров находится на уровне 10-100 Па в случае катода с площадью порядка 2 см^2 . В этих условиях привязка тока на катоде может быть, как диффузной, так и контрагированной.

Получение плазмы керамического материала с низкой термоэмиссионной способностью (например, TiO_2) возможно при использовании его в виде катода вакуумной дуги в виде смеси с относительно легко испаряемыми металлическими добавками (например, Cr), для уменьшения средней температуры катода и препятствию попаданию материала катодного тигля в плазму. Ток дуги замыкается на катоде преимущественно в форме катодных пятен. Продукты испарения и керамического материала, и металлической добавки участвуют в процессе генерации плазмообразующей среды, их компоненты определяются в составе плазменного потока в виде ионов. Доля ионов продуктов испарения керамического материала в потоке плазмы достигает 30%. Несмотря на контракцию тока дуга на катоде, капли катодного материала в продуктах его эрозии не наблюдаются, в том числе на поверхностях токопринимающих электродов.

4.5. Выводы к четвертой главе

Были получены и оценены ряд важных параметров плазмы диффузной вакуумной дуги на катоде из смеси порошков CeO_2 и Cr (ВАХ, тепловые потоки из плазмы на катод, температура электронов, концентрации различных компонентов в плазме). Отмечен эффект охлаждения смесового катода CeO_2+Cr дуговым разрядом, что существенным образом отличает его от аналогичных разрядов на катодах только из CeO_2 и только из Cr. С помощью времяпролетного МС был исследован ионный состав плазмы этого разряда в зависимости от тока дуги и напряжения. Показано, что при использовании такого смесового катода, плазменный поток представлен в основном ионами Cr^+ (более 90 %), ионы церия появляются только после длительной работы разряда, когда количество хрома в составе катода уменьшается в результате его испарения. Кроме того установлено, что массовое соотношение компонентов термоэмиссионного оксида и нетермоэмиссионного металла определяет характер зависимости напряжения разряда от температуры катода и, следовательно, параметры плазмы.

Был инициирован и изучен ВД разряд на катоде из смеси порошков TiO_2 и Cr . Показано, что разряд существует при характерной температура катода ≥ 1900 К, привязка тока на катоде имеет контрагированный характер. Вследствие этого параметры дуги слабо реагируют на изменение мощности подогрева катодного тигля и, соответственно, на изменение средней температуре катода. Измерена мощность, поступающая из плазмы на катод, она была в диапазоне 100-200 Вт в зависимости от тока дуги. Средний заряд потока плазмы находится на уровне 0,2, концентрация ионов плазмы на расстоянии 4 см за анодом составляет порядка 10^{12} см^{-3} , а на расстоянии 13 см за анодом может падать до 10^{10} см^{-3} . Температура электронов плазмы была на уровне 0,5 эВ. Плазма была представлена ионами Cr^+ и Ti^+ . Доля ионов титана могла достигать 30 и более процентов.

Глава 5

Реализация диффузной формы вакуумного дугового разряда в магнитном поле и исследование его влияния на параметры генерируемого потока плазмы

5.1. Вакуумная дуга во внешнем магнитном поле с арочной конфигурацией

Одной из научных задач диссертационной работы являлось исследование параметров диффузного вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом во внешнем магнитном поле. Внешнее магнитное поле используется в вакуумных разрядах с холодным катодом (контрагированная вакуумная дуга) для стабилизации характера движения катодных пятен. Существуют схемы стабилизации контрагированных разрядов как с осесимметричным магнитным полем [139] [140], так и с арочным магнитным полем [141] (помимо указанных в главе 1). Наличие внешнего магнитного поля вызывает изменение напряжения горения разряда, и, преимущественно приводит к его повышению. Повышение напряжения разряда в случае разряда с холодным катодом может приводить к возрастанию капельной фракции в разряде. Несмотря на большое количество экспериментальных данных по вакуумным дуговым разрядам с холодными катодами в магнитном поле, влияние магнитного поля на диффузную вакуумную дугу изучено недостаточно.

Диапазона магнитных полей для проведения экспериментов выберем исходя из величины магнитного поля, при которой электронная компонента плазмы становится замагниченной. Найти значение магнитного поля можно, сравнив величину циклотронной частоты электрона и частоты столкновений, что аналогично выполнению следующего условия:

$$\omega_{\text{цикл}} > \omega_{\text{столкн}}, \quad (12)$$

$$\frac{eB}{m_e c} > \omega_{\text{столкн}}, \quad (13)$$

где, $\omega_{\text{цикл}}$ – циклотронная частота электрона, $\omega_{\text{столкн}}$ – частота столкновений, e – элементарный электрический заряд, B – величина индукции внешнего магнитного поля, m_e – масса электрона, c – скорость света.

В оценке частоты столкновений будут учитываться лишь упругие межэлектронные столкновения. Дифференциальное сечение для случая кулоновского взаимодействия определяется формулой Резерфорда:

$$\sigma = \left(\frac{e^2}{2m_e v^2} \right)^2 \left[\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \right]^{-4}, \quad (14)$$

где, θ – угол рассеяния, v – относительная скорость частиц.

В плазме данную формулу можно преобразовать, если учесть взаимодействие лишь с частицами, находящимися внутри сферы с радиусом Дебая, и использовать классическое выражение с кулоновским логарифмом:

$$\sigma = 4\pi \left(\frac{e^2}{2m_e v^2} \right)^2 \lambda, \text{ где } \lambda = \ln \frac{3T_e r_D}{e^2}, \quad (15)$$

Тогда частоту межэлектронных столкновений можно оценить по формуле:

$$\omega_{\text{столкн}} = 2\pi\sigma n_e v, \quad (16)$$

где, n_e – концентрация электронов.

Концентрация электронов существенно меняется вдоль катод-анодного промежутка, поэтому имеет смысл провести расчет критического поля, для нескольких величин концентрации. Полученные значения приведены в таблице 8.

$n_e, \text{ см}^{-3}$	10^{14}	10^{13}	10^{12}	10^{11}	10^{10}
$B, \text{ Гс}$	48753,2	6880,7	888,9	109,0	12,9

Таблица 8. Значения величины критического магнитного поля при разных концентрация электронов.

В отсутствие магнитного поля согласно измерениям одиночным зондом концентрация электронов у анода составляет 10^{12} см^{-3} , а на расстоянии в 300 мм за анодом концентрация снижается до 10^{10} см^{-3} . Над поверхностью катода концентрация электронов составляет примерно 10^{14} см^{-3} . В вакуумно-дуговом разряде можно рассматривать напряжение на трех областях: катодном слое, положительном столбе плазмы и анодном слое. Процессы, происходящие в катодном слое, будут слабо подвержены влиянию магнитного поля величиной менее 1 кГс, так как концентрация пара и электронов, такие, что плазма заведомо немагничена. При этом именно процессы в катодном слое во многом являются определяющими для параметров генерируемой плазмы. Тем не менее, вблизи анода и за ним влияние магнитного поля будет существеннее, поэтому было решено начинать эксперименты с малого поля (~50 Гс у поверхности катода) и производить дальнейшее его изменение на основе получаемых результатов.

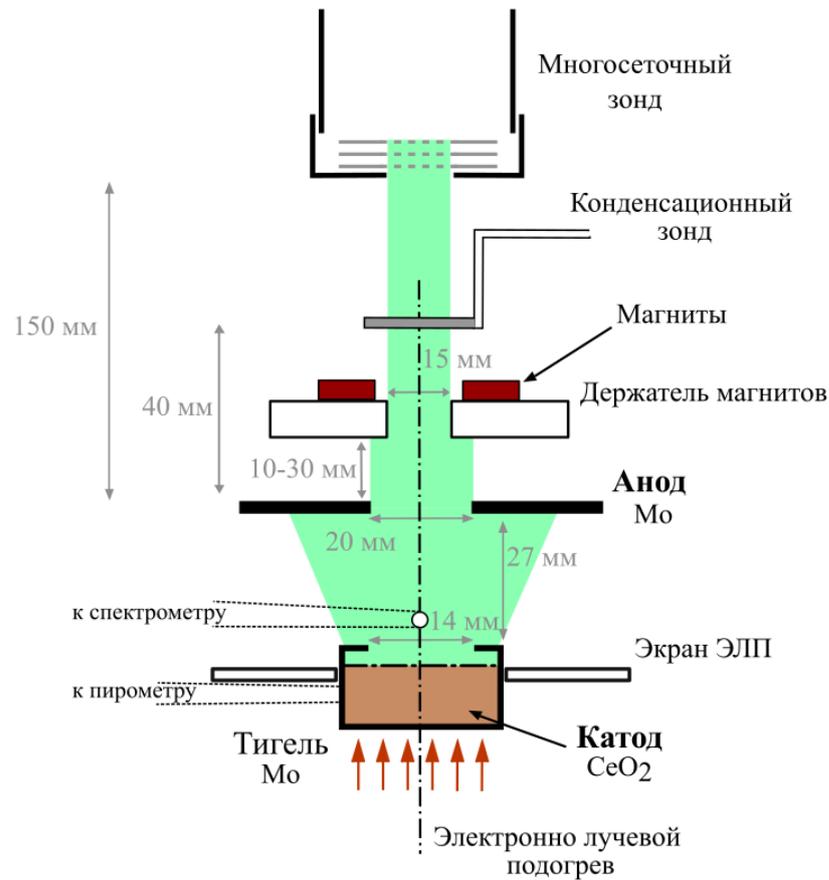


Рис. 5.1. Схема эксперимента

Исследование диффузной вакуумной дуги во внешнем арочном магнитном поле производилось на экспериментальной установке, описанной в разделе 3.1. Внешнее арочное магнитное поле (рисунок 5.2) создавалось при помощи постоянных неодимовых магнитов в форме колец с внешним диаметром 50 мм, внутренним 20 мм и высотой 5 мм. Магниты располагались в заанодном пространстве на водоохлаждаемом держателе круглой формы из нержавеющей стали (рисунок 5.1). В держателе имелось центральное отверстие диаметром 15 мм, которое располагалось соосно с катодом и отверстием в аноде. Точка Кюри для неодимового сплава N38, из которого были изготовлены магниты, составляет примерно 350 К. Перед и после проведения эксперимента проводилось измерение величины магнитного поля вблизи катода и анода, чтобы убедиться в неизменности магнитного поля из-за возможного нагрева тепловым излучением катода. Отметим, что тепловое излучение катода не попадало непосредственно на магниты, но могло попадать после отражения. Величина магнитного поля варьировалась путем изменения числа магнитов и расстояния между анодом и держателем магнитов.

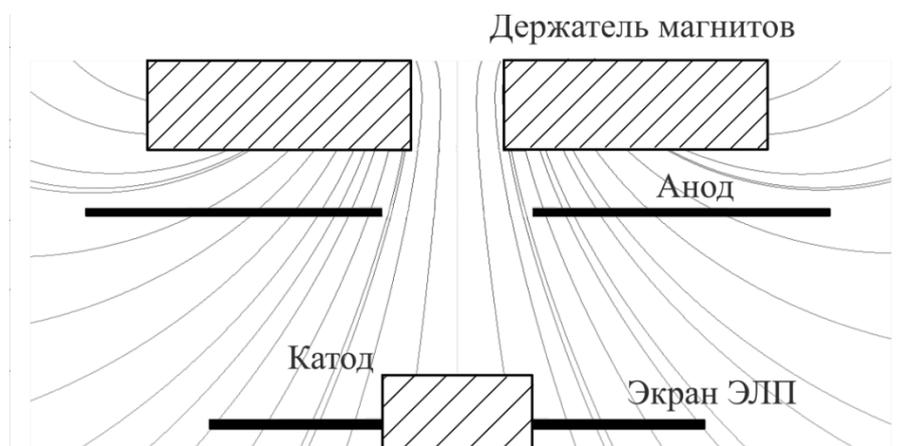


Рис. 5.2. Рассчитанная численно картина силовых линий магнитного поля в катод-анодном промежутке

Материалом катода в данных экспериментах был диоксид церия. Ток разряда варьировался в диапазоне 30 – 60 А. В экспериментах без магнитного поля было показано (раздел 3.4), что связь между напряжением дуги и температурой тигля также как и на металлических катодах имеет место, но варьирование температуры приводит к слабому относительному изменению величины напряжения.

В ходе экспериментов проводилось измерение ряда параметров плазмы, в первую очередь это были: средний заряд и энергия ионов в заанодном пространстве. Также проводился анализ спектров излучения плазмы, из которого определялся компонентный состав плазмы. Для анализа спектра излучения плазмы отбирались спектральные линии, которые хорошо разрешались спектрометром при потенциальном наличии в спектре линий атомов и ионов молибдена и церия. Данные о спектрах соответствующих элементов были взяты из базы NIST. Для атомов церия Се I были выбраны линии 501,1 и 485,0 нм, для однократных ионов Се II - 429,0; 394,3; 456,2, 250,3; 243,0 нм для Се III – 344,4; 350,5; 354,4 нм, для Се IV – 244,5 нм. Для атомов Мо I были выбраны линии 386,4; 379,8; 390,3 нм, для однократных ионов Мо II – 369,3; 329,2; 344,6 нм для Мо III – 250,6; 229,5 нм, для Мо IV – 206,0 нм.

Измерение энергии ионов осуществлялось методом многосеточного зонда. Для измерения среднего заряда применялся метод конденсационного зонда. Время экспозиции зонда составляло от 3 до 5 минут в зависимости от стабильности работы источника и условий эксперимента.

Измерения были проведены для трех величин магнитного поля. В первом эксперименте величина напряжённости магнитного поля около поверхности катода составляла 55 Гс, около анода 150 Гс.

Важным результатом экспериментов стала динамика разряда, так как ее характер отличался от случая без магнитного поля. Первая инициация разряда проводилась при температуре 2220 К, давлении остаточных газов в камере $6 \cdot 10^{-5}$ Торр и токе разряда 60 А. Горение разряда носило неустойчивый характер, который часто наблюдается сразу после зажигания разряда и, вероятно, связан с догревом поверхности катода. Величина напряжения была заметно больше, чем в случае отсутствия магнитного поля (10-13 В). Более того, в течении короткого времени (~ 1 минуты) напряжение разряда после пробоя менялось в пределах от 20 до 35 В. Это было связано с резким падением ускоряющего напряжения в ЭЛП. В следствие чего температура тигля упала до 2110 К. При падении температуры наблюдается переход от диффузного режима горения разряда к контрагированному, причем выражается он сначала в появлении катодных пятен, потом контрагировании тока на анод. При этом наблюдался сильный разогрев анода и пробой между экраном ЭЛП и анодом. Экран ЭЛП – это дополнительный плоский электрод, размещающийся вокруг тигля, с целью предотвратить возможное попадание отслаивающихся с анодов пленок катодного материала в процессе горения разряда. Потенциал экрана поддерживается равным потенциалу вакуумной камеры, которая заземлена через резистор номиналом 1,5 кОм, в следствии чего ее потенциал может отличаться от потенциала земли. Из-за значительного разогрева анода разряд был погашен. На рисунке 5.3 показаны кадры соответствующие контракции и расплавлению анода. Между представленными кадрами прошло время равное 6 секундам.

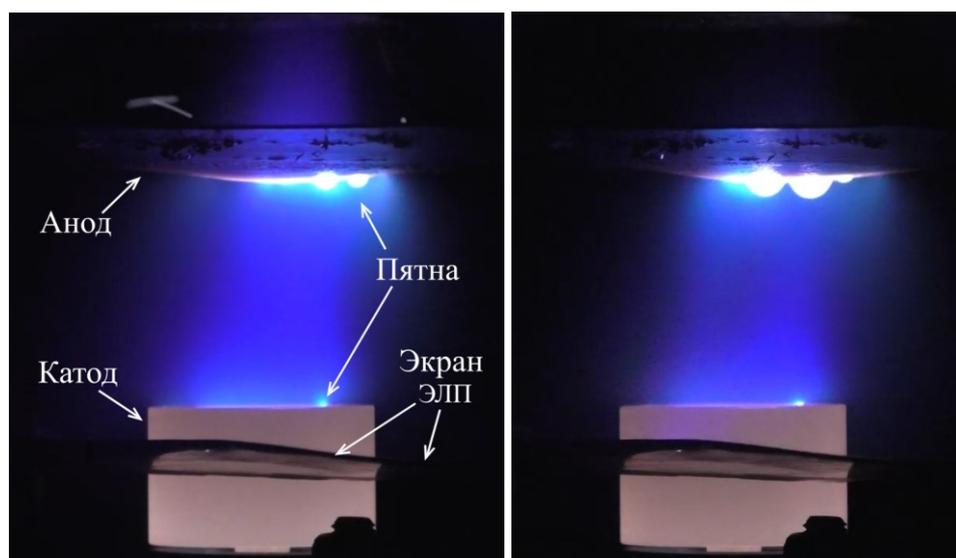


Рис. 5.3. Кадры эксперимента с магнитным полем 55 Гс у катода. Слева пример контрагирования тока разряда на катоде и аноде, справа появление капель на аноде

Повторное зажигание дугового разряда производилось на меньшем токе в 47 А. Температура тигля перед инициацией разряда также равнялась 2220 К. После зажигания разряда мощность ЭЛП вновь снижалась на 20 %. Это падение было сразу скомпенсировано, что позволило добиться диффузного горения разряда. При этом анод все равно сильно разогревался. Напряжение разряда составляло примерно 30 В. Горение разряда продолжалось в течении 2 минут, после чего вновь начались пробои между экраном ЭЛП и анодом, резкий рост напряжения разряда и разогрев анода.

Возрастание роли величины давления плазмообразующей среды для стабильности горения в случае магнитного поля было проверено в эксперименте с инициацией разряда при температуре тигля 1190 К. При этом сразу наблюдалось значительное контрагирование тока на аноде и его практические мгновенное проплавление.

Следующее зажигание производилось при более высокой температуре тигля равной 2270 К. Характер горения стал еще более стабильным и в данном режиме были произведены измерения многосеточным, конденсационным зондом и зарегистрированы оптические спектры плазмы. Режим стабильного горения разряда длился 5 минут, после чего вновь начались пробои между экраном и анодом и разогрев последнего. Более того при высоких температурах анода наблюдалось горение вторичного разряда между анодом и охлаждаемым держателем постоянных магнитов.

Фотографии с примерами моментов образования областей контрагирования разряда на экране ЭЛП представлены на рисунке 5.4. Наблюдавшиеся пробои между анодом и держателем магнитов представлены на рисунке 5.5.

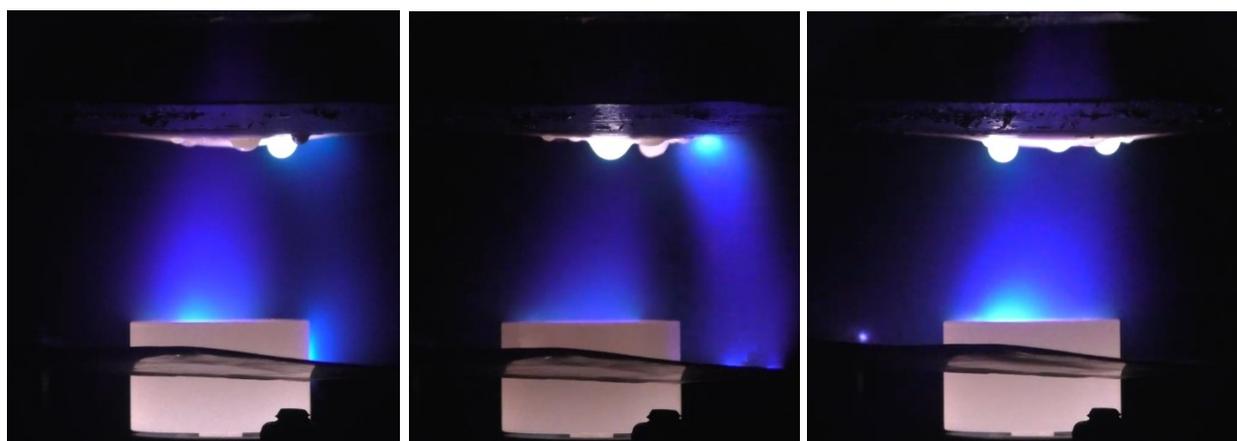


Рис. 5.4. Кадры эксперимента с магнитным полем 55 Гс у катода. Слева пример возникновения паразитного разряда между экраном ЭЛП и тиглем, в центре и справа возникновение паразитного разряда между экраном ЭЛП и анодом

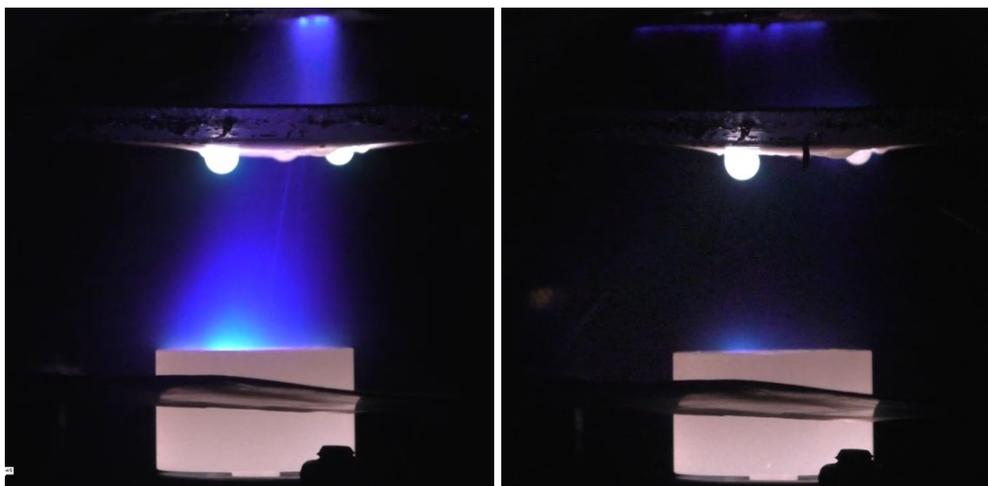


Рис. 5.5. Кадры эксперимента с магнитным полем 55 Гс у катода. На обоих кадрах примеры возникновения паразитного разряда между экраном ЭЛП и анодом

Длительность стационарных режимов горения дугового разряда при величине поля у катода 55 Гс составляла от 1 до 5 минут.

После проведения эксперимента на держателе магнитов были обнаружены треки от места привязки разряда в форме окружностей со средним радиусом около 50 мм (рисунок 5.6). Подобная картина характерна для следов на поверхности катода, оставляемых катодным пятном, в дуговом разряде с холодным катодом в магнитном поле [142] [143]. Наблюдаемые при проведении эксперимента вспышки и обнаруженные следы, свидетельствуют об активном участии держателя магнитов в качестве дополнительного электрода. Данные пробой возникали при резком разогреве анода, который проводил к появлению пара молибдена в промежутке между анодом и держателем. Пары молибдена вероятно ионизировались за счет электронов основного разряда. При этом текущий через держатель ток был ограничен сопротивлением между камерой и землей в 1,5 кОм, в следствии чего и наблюдался импульсный характер пробоев (наблюдались вспышки, а не стационарные пятна).

Дальнейшее повышение магнитного поля проводило к еще большей неустойчивости разряда. Наблюдались сильный разогрев анода множественные пробой между анодом и держателем. Стабилизации разряда при повышении температуры не происходило. Помимо этого, с возрастанием поля появились признаки горения разряда непосредственно на вакуумную камеру. Наблюдалось стационарное пятно (рисунок 5.7 слева). Плазмообразующей средой на поверхности вакуумной камеры могло выступать напыление, формирующееся при испарении катода. Длительность стационарных режимов горения дугового разряда составляла менее 1 минуты.

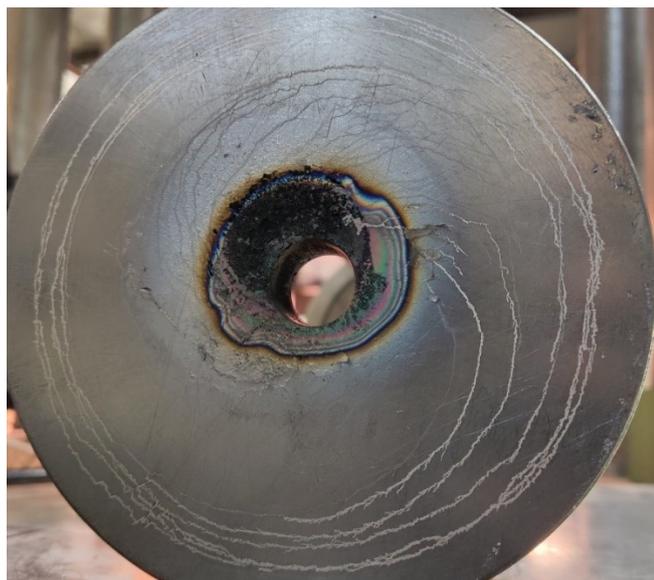


Рис. 5.6. Фотография стороны держателя магнитов, обращенной в плазму. Темное пятно в центре – пленка диоксида церия, сформировавшаяся в процессе горения разряда

Наиболее стабильное горение дугового разряда было получено после увеличения расстояния между анодом и держателем магнитов при величине магнитного поля у катода 30 Гс. Длительность стабильного режима составила 15 минут. Разогрев анода и образование капли молибдена также имело место, но средняя во времени температура анода была значительно ниже, чем при более высоких магнитных полях. Благодаря увеличению расстояния до держателя пробой между ним и анодом не происходили. Пример стабильно горящего разряда представлен на рисунке 5.7 справа.

Обобщим сказанное выше: во внешнем магнитном поле горение разряда имело значительно менее стационарный характер, это выразалось в резких скачках напряжения разряда и сильном разогреве анода, за которым следовали пробой либо между анодом и держателем магнитов, либо между анодом и экраном ЭЛП. Стабильность разряда снижалась в нескольких случаях. Во-первых, при понижении температуры тигля, так как при этом снижалась плотность плазмообразующей среды и возрастало напряжение разряда, а, следовательно, и поток энергии из плазмы в анод, который при этом резко разогревался. Во-вторых, при повышении величины тока разряда, так как при этом также увеличивался поток приносимой на анод тепловой энергии, в результате чего он также сильнее разогревался.

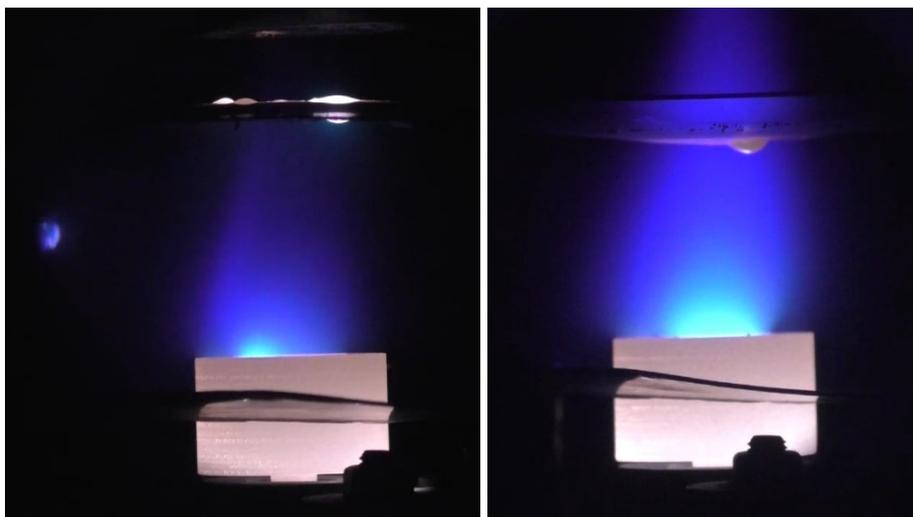


Рис. 5.7. Кадры эксперимента: слева - магнитное поле у катода 90 Гс наблюдается пятно на поверхности вакуумной камеры; справа - с магнитное поле 30 Гс у катода наблюдается стабильное горение разряда

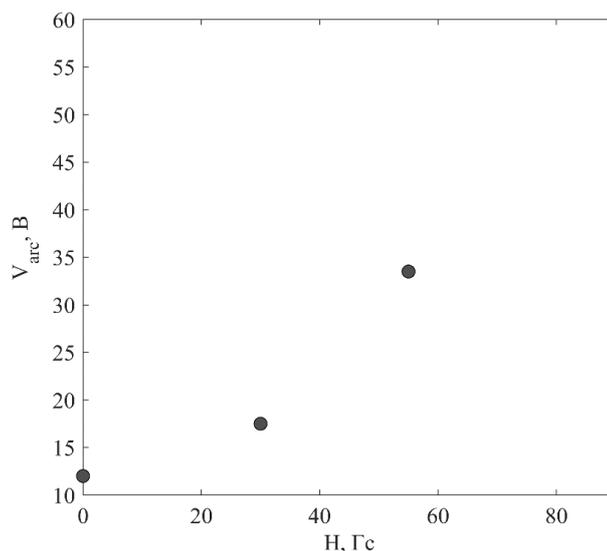


Рис. 5.8. Зависимость напряжения диффузной вакуумной дуги от величины магнитного поля при токе 46 А и температуре тигля 2270 К

Величина напряжения разряда существенно росла при увеличении магнитного поля. Полученная зависимость напряжения дуги от величины магнитного поля вблизи катода при фиксированных величинах тока 46 А и температуры тигля 2270 К представлена на рисунке 5.8. Отметим, что варьирование температуры приводило к изменению напряжения разряда, как и без магнитного поля. К примеру, в режиме с током 46 А, снижение температуры тигля с 2280 до 2220 К вызывало рост напряжения с 33,6 до 36,2 В, но существенные изменения напряжения были связаны в первую очередь с нестационарными режимами разряда, в которых измерения не проводились.

Приведем полученные данные о параметрах генерируемой плазмы в зависимости от магнитного поля и тока разряда. Средний заряд плазмы при величине магнитного поля у катода 55 Гс и токе разряда 46 А составил 2,04 е. Время экспозиции конденсационного зонда равнялось 3 минутам. Протекший через нагрузочный резистор заряд 1,18 Кл, а прирост массы 0,81 мг. При величине магнитного поля у катода 30 Гс и токе через разряд 30 А средний заряд составил 1,71 е. Время экспозиции конденсационного зонда составило 5 минут. Протекший через нагрузочный резистор ток 1,86 Кл, а прирост массы 1,52 мг. Полученные данные о среднем заряде представлены в таблице 9. Из представленных данных видно, что наличие магнитного поля увеличивает значение среднего заряда плазмы. К примеру, можно сравнить режимы при одинаковой мощности в разряде: без магнитного поля средний заряд был равен 0,75 е, а при магнитном поле величиной 30 Гс – 1,71 е.

$H_{\text{катод}}, \text{ Гс}$	$I_{\text{arc}}, \text{ А}$	$U_{\text{arc}}, \text{ В}$	$P_{\text{arc}}, \text{ Вт}$	$t_{\text{exp}}, \text{ МИН}$	Средний заряд, е
55	46	33-35	1564	3	2,04
30	37	33-39	1332	5	1,71
0	41	10	410	5	0,45
0	100	13	1300	5	0,75

Таблица 9. Средний заряд диффузной вакуумной дуги при разных значения магнитного поля

На рисунке 5.9 приведена зависимость наиболее вероятной энергии ионов от напряжения разряда при фиксированном токе дуги равном 37 А и величине магнитного поля 30 Гс. Видно, что энергия ионов увеличивается с ростом напряжения разряда с коэффициентом пропорциональности порядка 1,62. На рисунке 5.10 показаны измеренные значения энергии ионов в зависимости от тока разряда. При величине магнитного поля около катода 55 Гс наиболее вероятная энергия ионов составила 25 эВ при токе разряда 46 А и напряжении 33,6 В. При магнитном поле 30 Гс и токе разряда 46 А, также получилось вывести разряд на напряжение 33,6 В. Средняя энергия при этом была равна 33,5 эВ. Без магнитного поля наиболее вероятная энергия ионов была близка к 11 эВ. Зависимость энергии ионов от индукции магнитного поля вблизи катода представлена на рис. 5.11. Из графика виден значительный рост энергии ионов с ростом поля.

Полуширина энергетического спектра по величине была близка к наиболее вероятной энергии. Для разных значений напряжения разряда полуширина лежала в диапазоне от $0,65 \cdot E_{\text{max}}$ при высоких значениях энергии (~ 30 эВ) и напряжения до $1,2 \cdot E_{\text{max}}$ при низких значениях энергии (~ 15 эВ) и напряжения.

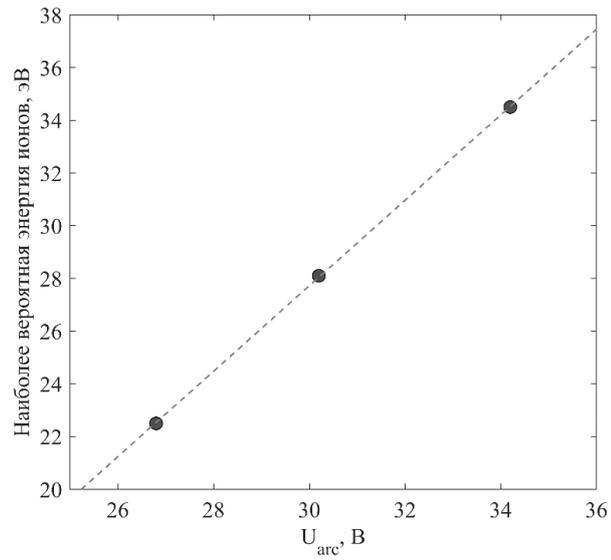


Рис. 5.9. Наиболее вероятная энергия ионов в зависимости от напряжения разряда. Магнитное поле 30 Гс, ток разряда 37 А. Коэффициент наклона линейной аппроксимации - 1,62

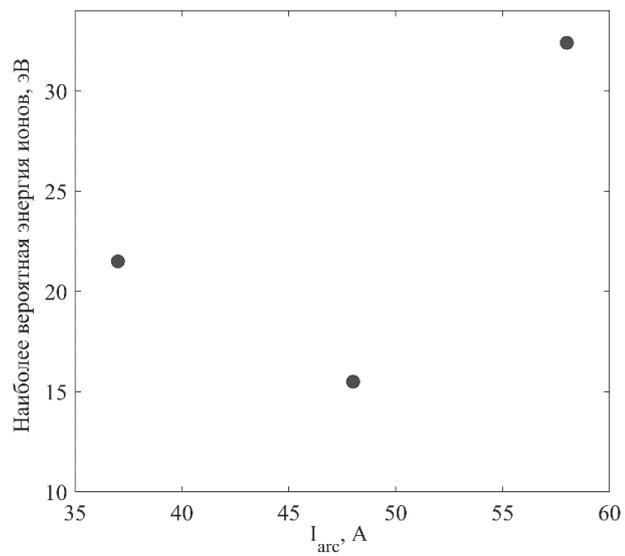


Рис. 5.10. Наиболее вероятная энергия ионов в зависимости от тока разряда. Магнитное поле 30 Гс. Напряжение при токе 37 А – 26.8 В, при токе 48 А – 19 А, при токе 58 А – 30 В

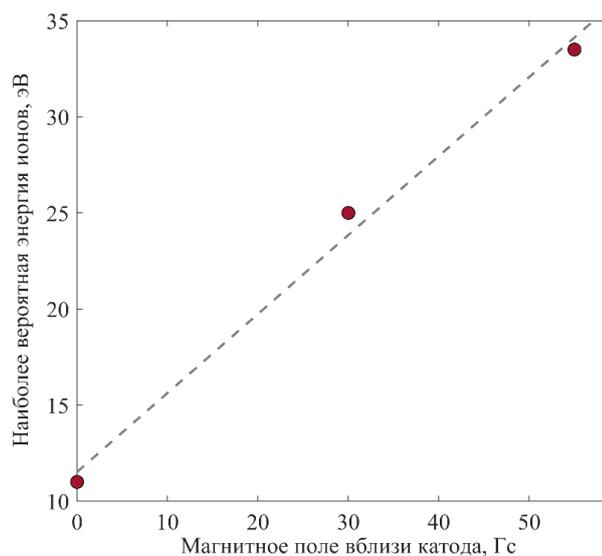


Рис. 5.11. Наиболее вероятная энергия ионов в зависимости от величины магнитного поля вблизи катода при токе разряда 46 А

Данные о присутствии ионов определенных кратностей в потоке плазмы были получены из анализа оптических спектров плазмы. Примеры зарегистрированных спектров представлены на рис 5.12. В спектрах преобладают линии атомов и однократных ионов церия и молибдена. Также имеются линии двухкратных ионов церия (344,4; 350,5; 354,4 нм). Спектральные линии трехкратных ионов церия и молибдена и четырехкратных ионы церия лежат главным образом в области коротковолнового (100-280 нм) и экстремального (10-100) ультрафиолета. В диапазон 200-900 нм попадает относительно мало линий Се IV – 244,5 нм и Мо IV – 206,0 нм, которые не были обнаружены с спектрах. Четырехкратные ионы молибдена в спектрах не обнаружены. Таким образом, по результатам анализа оптических спектров можно заключить, что в плазме преобладают однократные и двухкратные ионы церия и молибдена, что хорошо согласуется с результатами измерения среднего заряда. На рисунке 5.13 показаны участки спектра, на которых показано отсутствие линии трехкратных ионов церия и двухкратных и трехкратных ионов молибдена. При увеличении магнитного поля на оптических спектрах заметно снизилась величина спектральных линий Се III (рисунок 5.14).

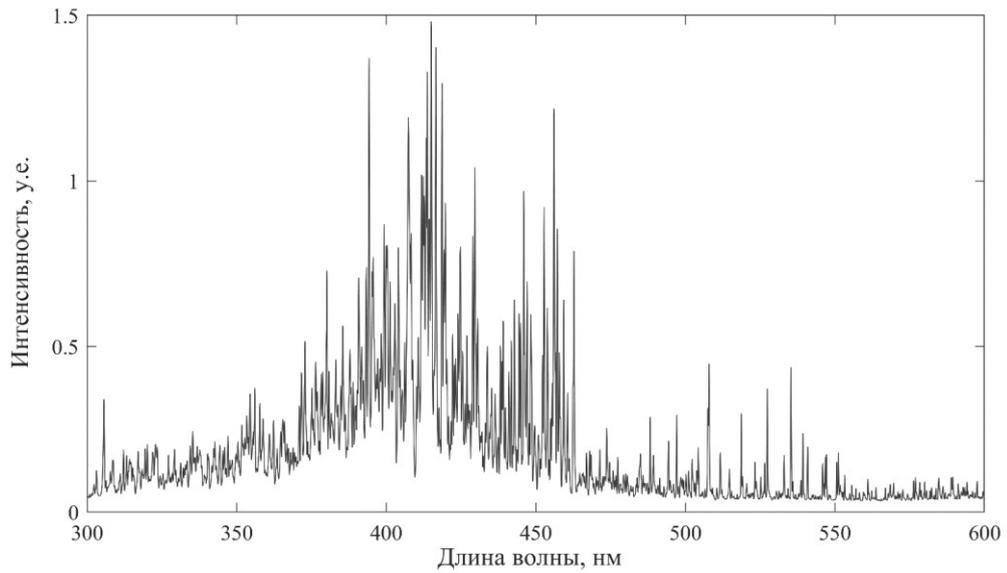


Рис. 5.12. Пример зарегистрированного спектра излучения плазмы в диапазоне длин волн от 300 до 600 нм. Большая часть линий в центральной части спектра являются линиями Ce II. Величина магнитного поля 55 Гс, ток 47 А

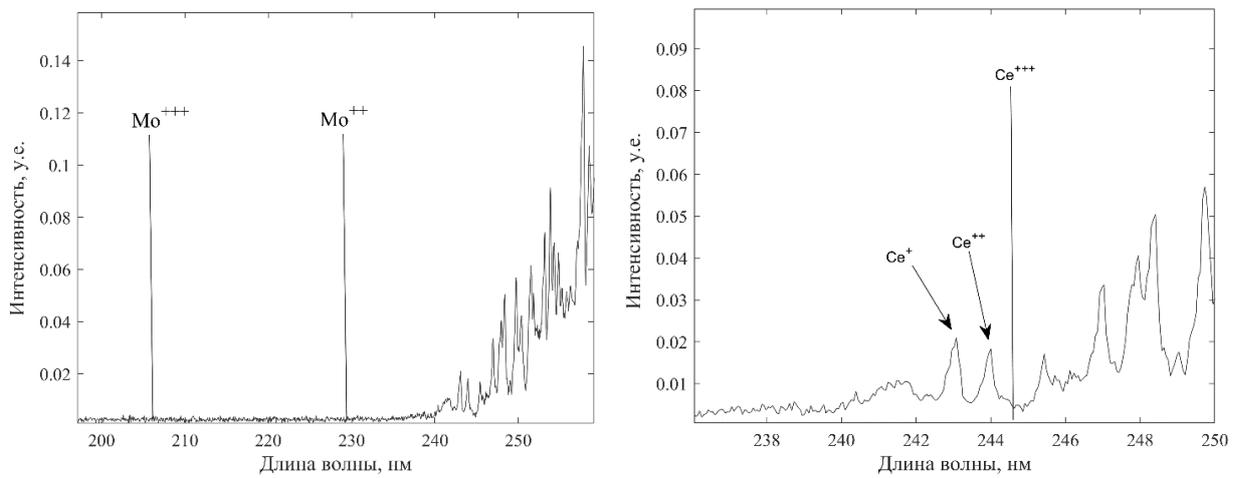


Рис. 5.13. Примеры участка спектра излучения плазмы в области коротковолнового ультрафиолета. Величина магнитного поля 55 Гс, ток 47 А

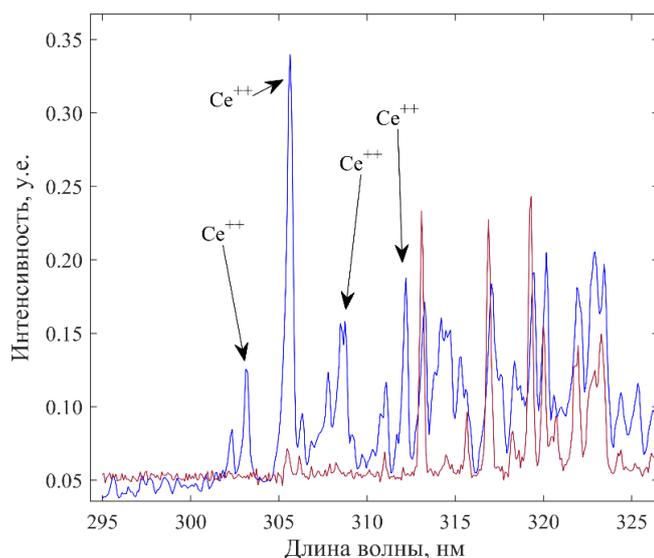


Рис. 5.14. Примеры участка спектра излучения плазмы, на котором показано уменьшение интенсивности спектральных линий двухкратных ионов церия при повышении магнитного поля. Синий спектр соответствует полю 55 Гс, красный – 90 Гс

Полученные в ходе описанных экспериментов факты о возрастающей, из-за локального перегрева, роли анода, сложностями в работе ЭЛП в магнитном поле, паразитных пробоях на конструкционные элементы учитывались при разработке нового источника плазмы на основе вакуумного дугового разряда.

5.2. Экспериментальный стенд для исследования вакуумной дуги с подогреваемым катодом во внешнем магнитном поле с аксиальной конфигурацией

Для проведения экспериментальных исследований диффузного вакуумного дугового разряда в аксиальном магнитном поле был разработан и создан экспериментальный стенд (рисунок 5.15). Созданный стенд включает в себя: вакуумную систему, систему генерации магнитного поля и источник плазмы.

Вакуумная система представляет собой цилиндрическую вакуумную камеру внешним диаметром 180 мм и высотой 375 мм (рисунок 5.16) с двухступенчатой системой откачки. Для создания форвакуума используется пластинчато-роторный насос НВР-4,5Д: быстрота действия при давлении до 2 Торр $4,5 \text{ м}^3/\text{ч}$, предельное давление $2,5 \cdot 10^{-4}$ Торр. Достижение более высокого вакуума осуществляется диффузионным насосом НВДМ-160: предельное давление $5 \cdot 10^{-7}$ Торр. Общий объем вакуумной системы около $0,03 \text{ м}^3$, и предельное достигнутое давление остаточных газов $5 \cdot 10^{-6}$ Торр. Время откачки до рабочего давления ($2 \cdot 10^{-5}$ Торр) составляет около 30 минут

(без учета времени разогрева паромасляного насоса). Для измерения давления в ходе экспериментов используются термопарный датчик ПМТ-6-3 (диапазон $750 \cdot 10^{-3}$ Торр) и ионизационный датчик ПМИ-2 (диапазон $1 \cdot 10^{-3} - 1 \cdot 10^{-7}$ Торр).



Рис. 5.15. Фотография созданного экспериментального стенда для исследования вакуумного дугового разряда в аксиальном магнитном поле

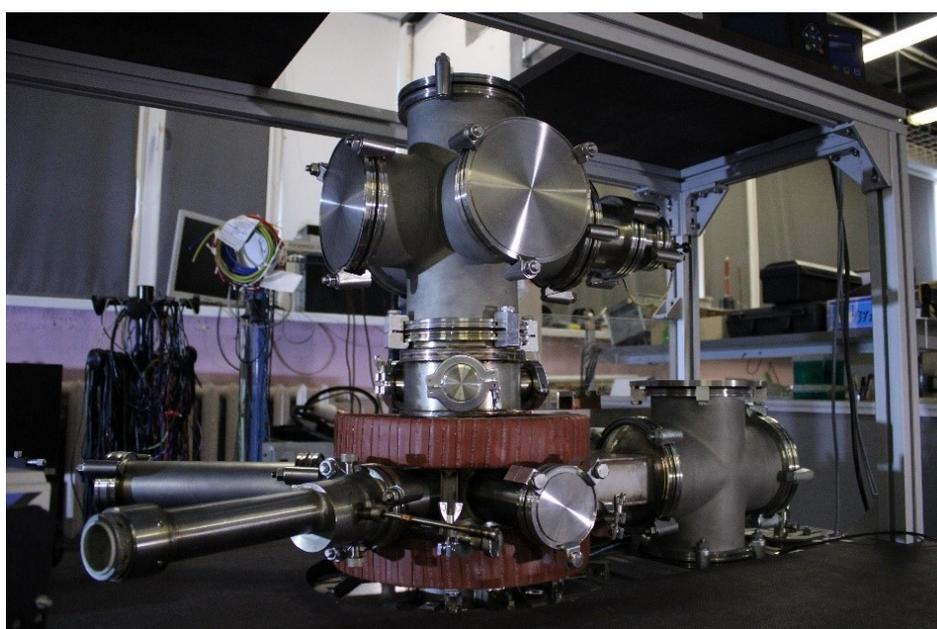


Рис. 5.16. Фотография вакуумной камеры.

Для генерация магнитного были выбраны катушки Гельмгольца. Внутренний диаметр катушек равен 200 мм, внешний диаметр 300 мм, высота 50 мм. Расстояние между центральными плоскостями катушек соответственно 125 мм. Геометрические параметры катушек были выбраны так, чтобы обеспечить размер области гомогенности магнитного поля соответственно размерам катод-анодного промежутка дугового разряда. На рисунке 5.17 представлено рассчитанное распределение напряженности магнитного поля вдоль оси источника плазмы и в радиальном направлении в плоскости соответствующей верхней кромке молибденового тигля (т.е. вблизи катода). Высота разрядного промежутка составляет 27 мм, размер разряда в радиальном направлении соответствует размеру тигля 12 мм. Расчет позволяет оценить неоднородность поля в области разряда. Соответственно относительное изменение напряженности вдоль разрядного промежутка составляет $\frac{\Delta H_z}{H} = \frac{4 Гс}{1120 Гс} = 3,5 \cdot 10^{-3}$.

Относительное изменение вдоль радиуса разрядного промежутка составляет $\frac{\Delta H_r}{H} = \frac{5 Гс}{1120 Гс} = 4,4 \cdot 10^{-3}$.

Для намотки катушек использовалась медная трубка с внешним диаметром 10 мм и толщиной стенки 1 мм. Для изолирования витков использовалось двухслойное покрытие из термоусадочной трубки и изоляционного лака. Корпус катушек изготовлен из нержавеющей стали. Для питания магнитных катушек используется специализированный источник питания мощностью 45 кВт (1500 А, 80 В). Число витков в каждой катушке равно 16. Выделяемая тепловая мощность при этом отводится водяным охлаждением.

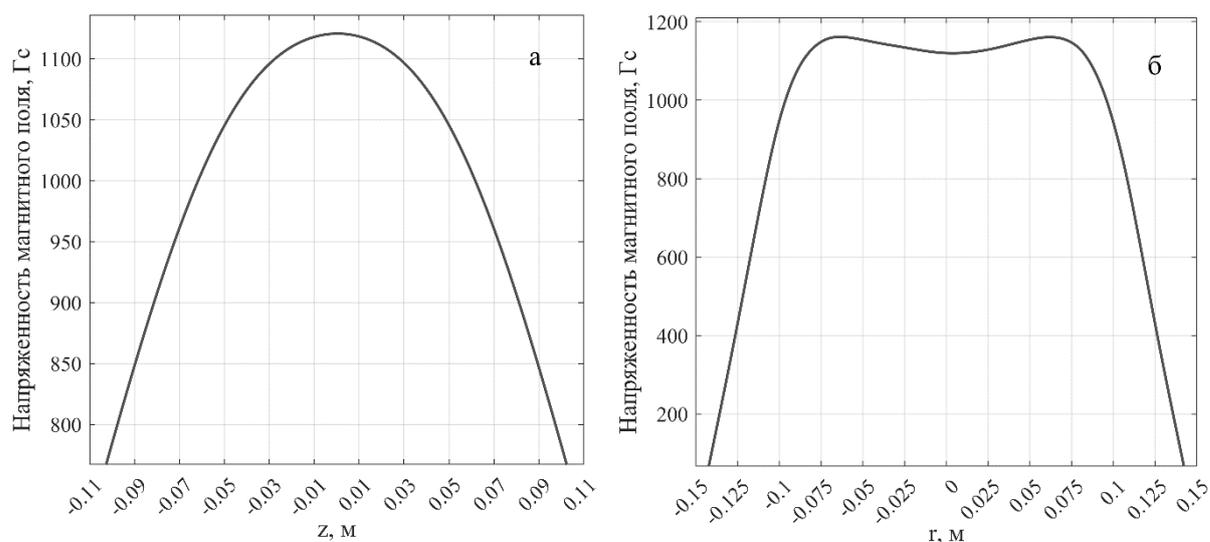


Рис. 5.17. Магнитное поле в катушках Гельмгольца при токе 1200 А; а – вдоль оси симметрии катушек; б – вдоль радиуса в плоскости катода.

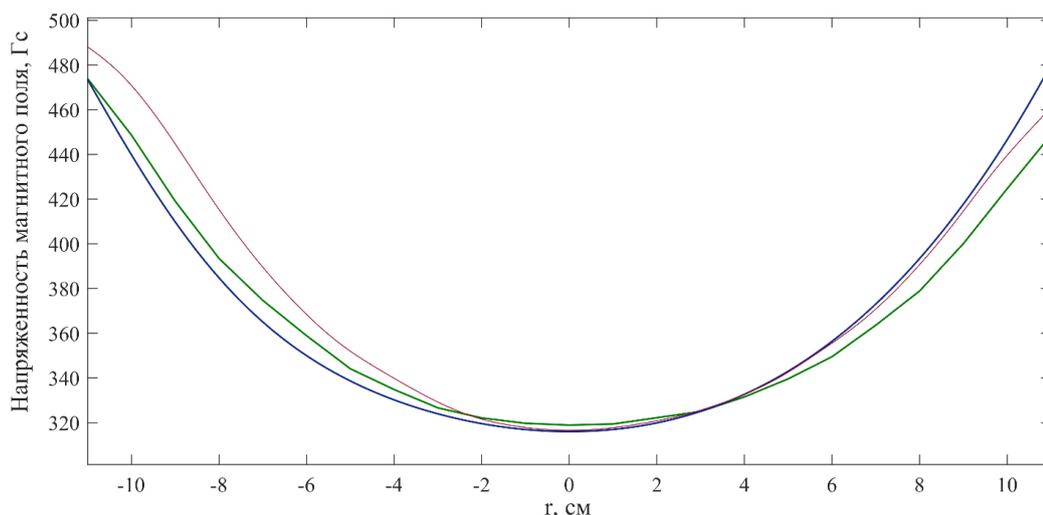


Рис. 5.18. Радиальные распределения напряженности магнитного поля вдоль трех различных диаметров.

После изготовления катушек магнитное поле каждой из них было измерено вдоль трех диаметров, находящихся в плоскости одного из оснований катушки, с целью выявления возможного нарушения аксиальной симметричности поля. Нарушение симметрии возникает у ввода и вывода токонесущей трубки в катушку. Результаты измерений индукции магнитного поля для одной из катушек представлены на рисунке 5.18. Видно, что в центральной части катушки ($r < 2$ см) магнитное поле симметрично. Симметрия нарушается в области ввода витков (красный график), что не должно существенно влиять на протекание дугового разряда на оси системы. Измерения индукции магнитного поля проводились при помощи магнитометра на основе датчика Холла.

Калибровочный график для двух катушек представлен на рисунке 5.19. Геометрические параметры катушек соответствуют удобному коэффициенту пересчета тока в индукцию поля B (Гс) $= 0,96 \cdot I$ (А), т.е. очень близкий к 1.

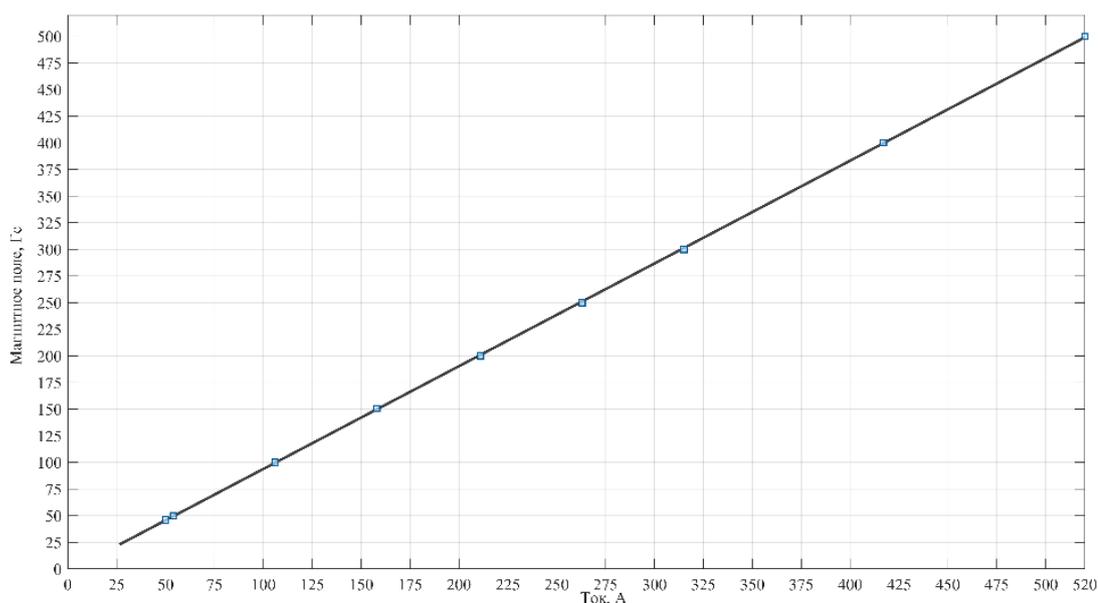


Рис. 5.19. Калибровочный график для индукции магнитного поля от задаваемого тока в источнике питания.

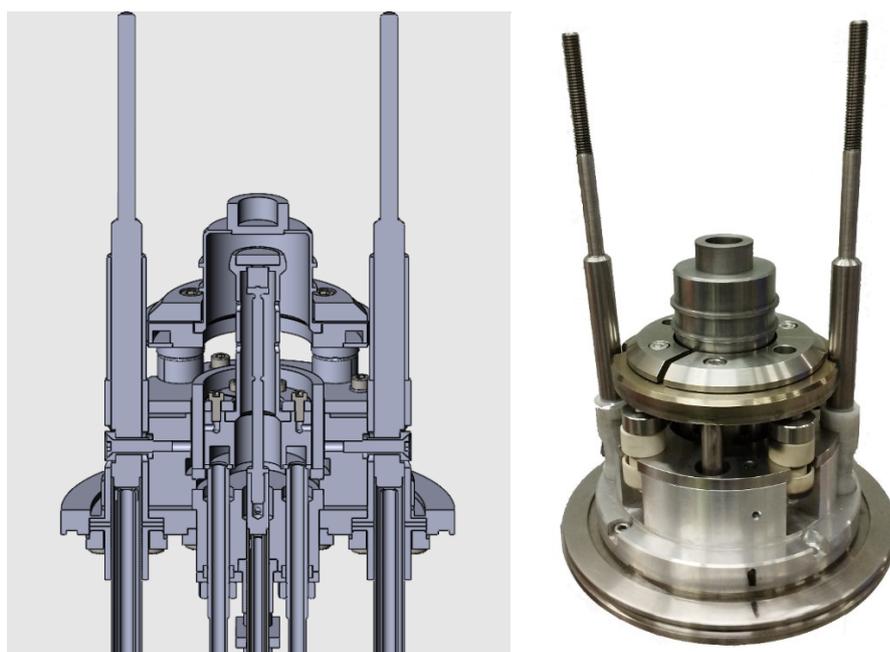


Рис. 5.20. Модель и фотография нового катодного узла источника плазмы

Источник плазмы на основе вакуумного дугового разряда был существенно переработан. С целью повышения максимальной температуры тигля и повышения стабильности работы подогрева был переработан блок ЭЛП (рисунок 5.21). Вольфрамовая проволока, служившая ранее эмиссионным элементом термоэлектронов, была заменена на таблетку диаметров 20 мм и высотой 5 мм из LaB₆. Это необходимо по нескольким причинам. Во-первых, проволока дает

локализованный пучок электронов (трубчатой структуры), что, при наличии аксиального магнитного поля, может приводить к проплавлению дна тигля. Во-вторых, проволока не удобна при монтаже и требует регулярной замены, что приводит к снижению эффективности эксплуатации. В-третьих, в прошлой конструкции был зазор между тиглем и линзой ЭЛП, в результате чего e^- могли покидать промежутки, что проявлялось в паразитных пробоях или могло влиять на величину напряжения разряда. Переход к новому термоэмиссионному элементу с одной стороны снимает данные проблемы, с другой требует иного подхода к разогреву, т.к. прямоточный разогрев LaB_6 из-за его высокой проводимости не рационален. Поэтому в схему был добавлен терморезистивный элемент из карбида кремния SiC , который разогревался постоянным током, и разогревал таблетку LaB_6 . Электрофизические характеристики подобных терморезистивных элементов зависят от наличия в составе присадок и применявшейся методики спекания порошка.

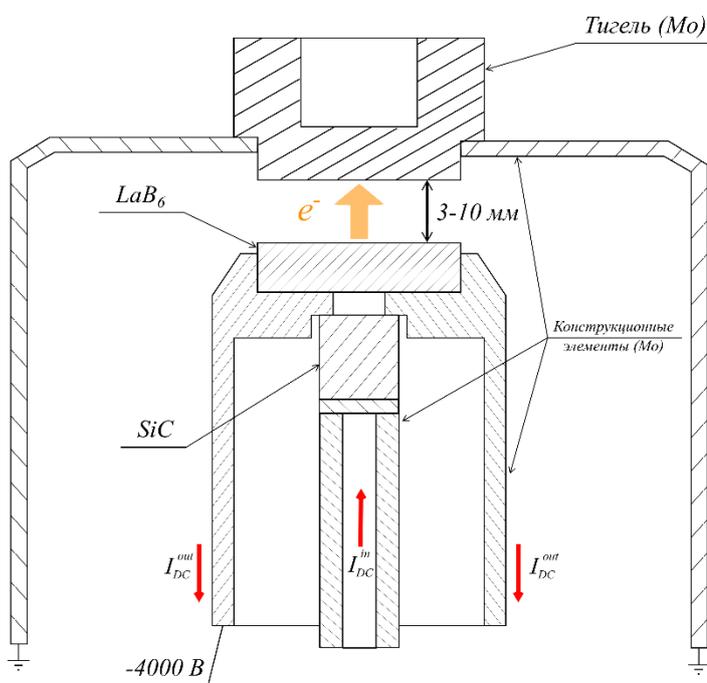


Рис. 5.21 Схема электронно-лучевого подогрева тигля.

Для питания электронно-лучевой пушки используется источник питания мощностью до 2 кВт (4 кВ, 0,5 А). Максимальное ускоряющее напряжение в электронно-лучевой пушке составляет 4 кВ, максимальная мощность достигается источником питания при токе 0,5 А. Радиус таблетки равен 10 мм, что соответствует площади 3,14 см². Тогда для обеспечения тока в 0,5 А за счет термоэмиссии, необходимо достичь температуры LaB_6 примерно 1450-1500 К [64]. Отметим, что в случае работы в магнитном поле источник питания ЭЛП должен быть

стабилизирован по мощности, иначе при варьировании величины магнитного поля, температура катода будет меняться.

Форма держателя тигля в форме перевернутого стакана предотвращает попадание паров катода в блок ЭПП, и обеспечивает более точное позиционирование тигля относительно оси источника. Высокая температура тигля приводит к необходимости использования тугоплавких металлов для держателя тигля (использовался молибден).

Высокая температура тигля (до 2500 К) приводит к большим тепловым нагрузкам на элементы катодного узла источника плазмы. Помимо тигля высокую температуру имеет таблетка из LaB_6 , служащая эмиттером термоэлектронов. Таким образом, необходима реализация водяного охлаждения катодного узла. Это позволяет минимизировать использование молибдена, но при этом необходимо знать, как температура будет распределена в деталях катодного узла, чтобы избежать перегрева или расплавления изоляторов. Для выбора конкретных размеров деталей и параметров охлаждаемых деталей проводился тепловой расчет позволивший реализовать тепловую развязку. Иными словами, локализовать высокую температуру на молибденовых деталях. Это достигалось варьированием толщины стенок и созданием отверстий для снижения теплового потока от горячих на охлаждаемые детали. При расчете задавались граничные условия первого рода: на горячих деталях максимальная необходимая температура (2500 К на тигле), на каналах водяного охлаждения максимальная возможная температура воды в охлаждающем контуре (330 К, при ее превышении наступает аварийный случай). В терморезистивном элементе задавалась выделяемая мощность джоулевого тепла, обеспечивающая необходимую температуру поверхности LaB_6 . Далее численно решалось уравнение теплопроводности с дополнительным учетом переноса энергии за счет излучения. Пример результата подобного расчета представлен на рисунке 5.22.

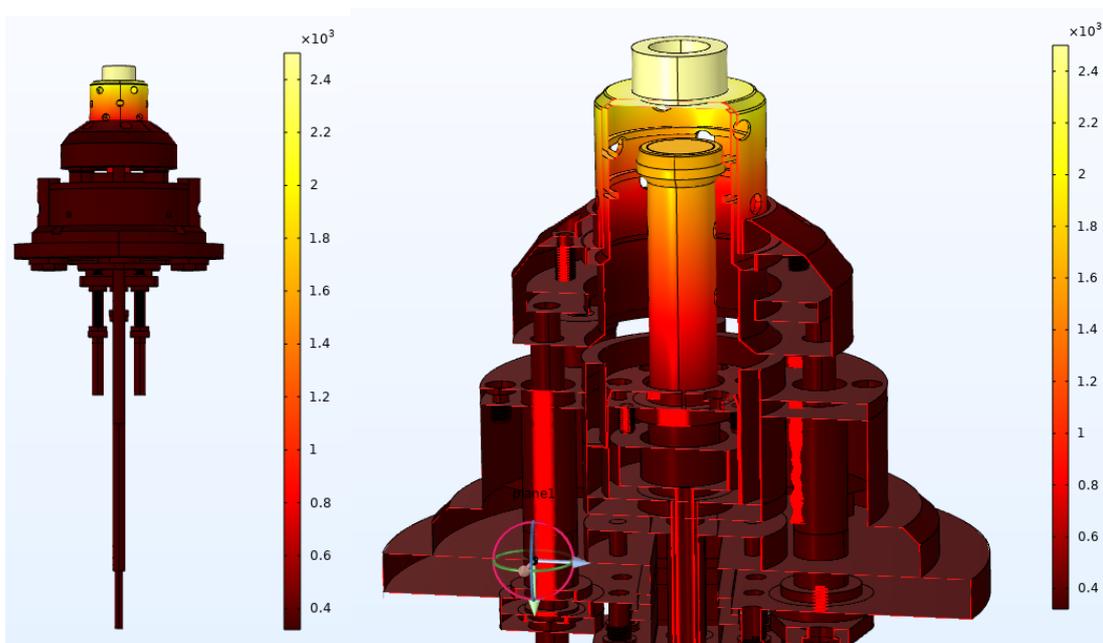


Рис. 5.22. Тепловой расчет катодного узла источника плазмы, проводившийся для оптимизации геометрических параметров (температурная шкала в К).

Значительно был изменен анод источника. Как показали эксперименты в арочной конфигурации магнитного поля происходит сильный разогрев анода. Причиной этого является рост напряжения разряда и изменение геометрии плазменного столба «поджатие», приводящее к росту плотности энергии, приносимой на анод электронами и ионами плазмы. Итоговое значение температуры на аноде определяется не только потоком приходящей энергии, но и уходящей в результате теплопроводности и излучения энергии. Увеличение толщины анода повышает полный поток уносимой энергии, в результате температура в области привязки разряда должна понизиться.

Выбор необходимой толщины анода базировался на основе следующего теплового расчета: в ходе экспериментов на аноде образовывались капли материала анода – молибдена, следовательно достигалась температура его плавления – 2896 К. Данное значение позволяет оценить мощность, приносимую на анод из плазмы. Задавшись геометрическими размерами области привязки разряда на поверхности анода, временем разогрева анода (известного по видеозаписи эксперимента) и граничными условиями, возможно оценить приходящую мощность. Анод крепится на медных шинах, которые в свою очередь закреплены на медных охлаждаемых тоководах. Из-за высокой теплопроводности меди и малой толщины анода (0,5 мм), с хорошей степенью точности можно считать температуру анода в области непосредственного контакта с медью равной порядка 550 К. Тепловая мощность приводящая к разогреву в центральной части анода до 2900 К (температуре плавления молибдена, т.к.

формировались капли) согласно расчету равна 450 Вт. На рисунке 5.23 слева показано распределение температуры на поверхности анода и вдоль оси, проходящей через центр анода и крепления к медным шинам.

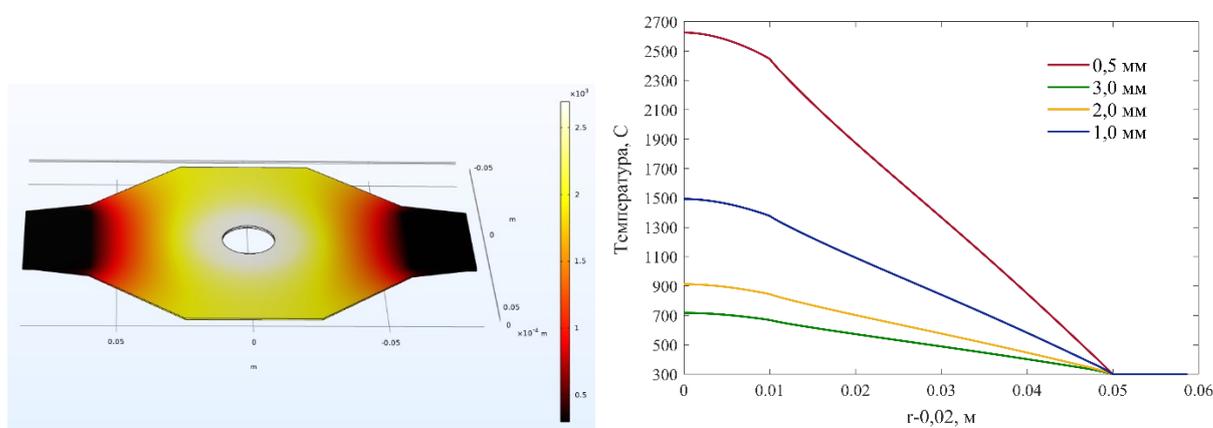


Рис. 5.23. Расчет распределения температуры на аноде разряда (слева) и зависимость температуры от радиуса для различных толщин анода (справа)

Максимальная допустимая температура анода, не приводящая к появлению около него плазмы, может быть оценена по кривой Пашена. При температуре около 1250 К испаряющегося с анода вещества будет заведомо недостаточно, чтобы создать условия для пробития. Данная температура при найденной ранее мощности соответствует толщине анода более 2 мм. На рисунке 5.23 справа показаны соответствующее распределения температуры. Отметим важное обстоятельство: диоксид церия обладает при нормальных условиях очень малой проводимостью, которая растет при повышении температуры (глава 3). Поэтому при использовании холодного анода его проводимость снижается, по мере запыления материалом катода, поэтому решение описанной выше проблемы использованием анода с водяным охлаждением невозможно. Описанная модель имеет явные неточности в первую очередь связанные с предположением об однородности распределения подводимой из плазмы мощности в центральной части анода, так как при протекании разряда может происходить, так контрагирование тока на анод разряда. В этом случае происходит очень сильный локальный разогрев в области пятна. Таким образом, описанная оценка хорошо работает в случае именно диффузного типа привязки разряда, реализация которого и является целью разработки источника.

Итоговым решением стало использование композитного анода, состоящего из двух частей: заменяемой центральной части, изготовленной из тугоплавкого материала и периферийной из нержавеющей стали. Это позволяет избежать использования расходных деталей из дорогостоящих материалов. Модель анода представлена на рисунке 5.24.

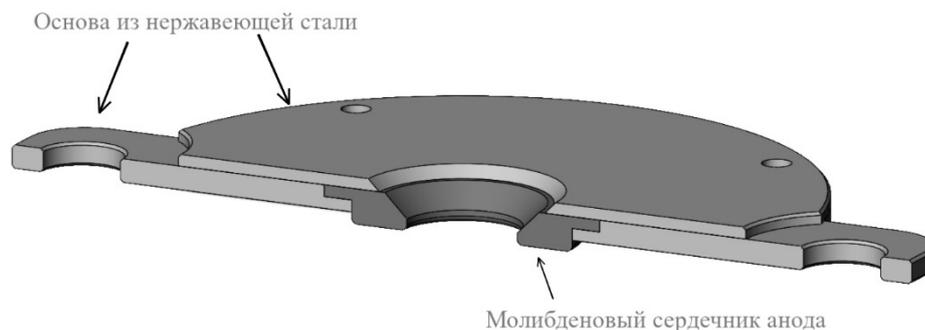


Рис. 5.24. Модифицированный анод с тугоплавким сердечником для снижения влияния вторичной плазмы генерируемой у анода

Наиболее нестабильным периодом при горении диффузной вакуумной дуги является момент инициации и последующие несколько минут. С целью более контролируемого зажигания разряда добавлен дополнительный иницирующий электрод, на который подаются импульсы высокого напряжения (2 кВ), прекращающиеся при достижении тока между анодом и катодом величины в 10 А. Данный электрод представляет собой молибденовое острие, закрепленное на подвижном вакуумном вводе. При установлении устойчивого разряда он выводится из разрядного промежутка.

5.3. Результаты экспериментов по инициации вакуумного дугового разряда с катодом из гадолиния в аксиальном магнитном поле

В качестве материала катода в первых экспериментах в аксиальном магнитном поле был выбран гадолиний, т.к. ДВД разряд с гадолинием хорошо изучен без магнитного поля и легко реализуется в диффузной форме. Инициация разряда осуществлялась при температуре тигля около 1900 К в отсутствии магнитного поля. Давление остаточных газов в вакуумной камере лежало в диапазоне $0,8-2,0 \cdot 10^{-5}$ Торр. Схема эксперимента приведена на рисунке 5.25.

В ходе первых экспериментов предполагалось получить первые представления о нескольких характеристиках нового источника плазмы. Во-первых, зависимости напряжения от мощности подогрева тигля для нескольких значений магнитного поля. Это, в частности, позволяет достоверно определить влияние магнитного поля на величину напряжения. Во-вторых, ВАХ разряда при фиксированной мощности также для нескольких величин магнитного поля.

Амплитуда флуктуаций напряжения дуги по величине соответствовала диффузному типу катодной привязки тока режиму в большинстве наблюдавшихся режимов разряда.

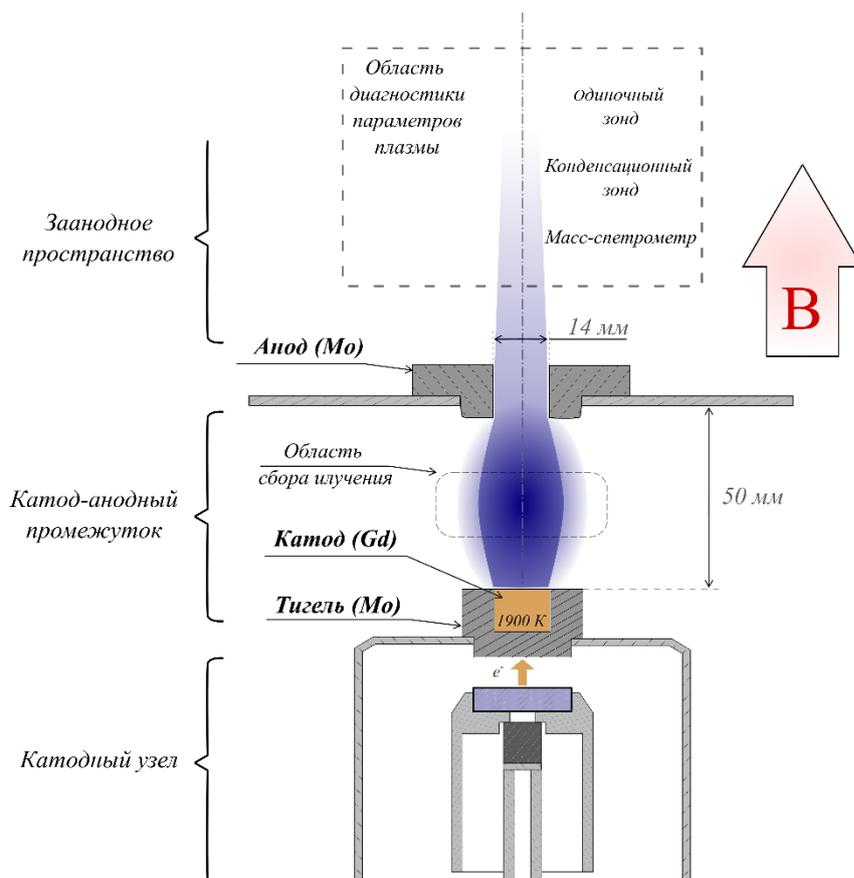


Рисунок 5.15 Схема экспериментов с аксиальным магнитным полем

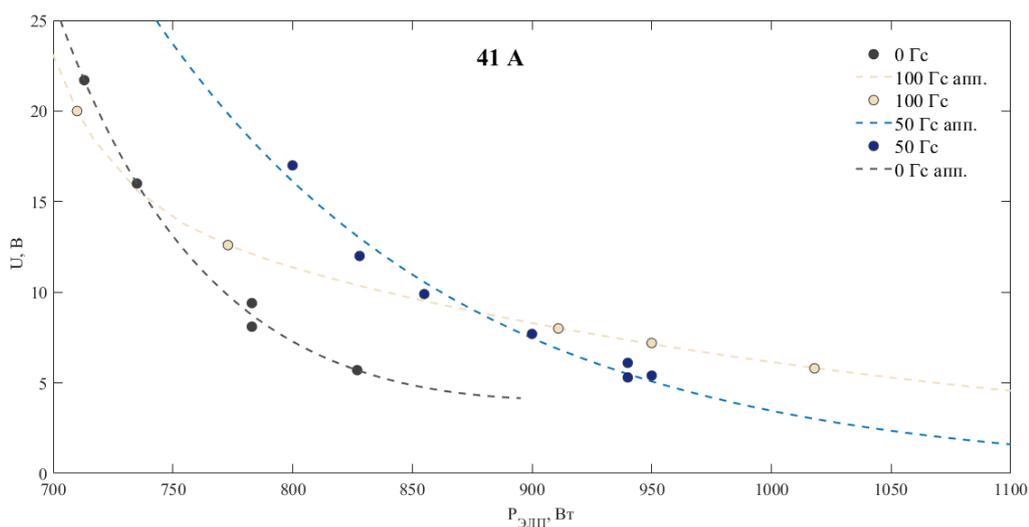


Рис. 5.25 Зависимость напряжения разряда от мощности подогрева в магнитных полях 0, 50, 100 Гс.

Были получены зависимости напряжения от мощности для тока 41 А в трех магнитных полях – 0, 50, 100 Гс (рисунок 5.26). Сразу отметим, что для 100 Гс только крайняя правая точка кажется достоверной, другие точки были получены в конце эксперимента, когда вероятно заканчивалось вещество и стационарных режимов по напряжению не удавалось получить. Поясним сказанное на графике напряжения разряда от времени эксперимента (рисунок 5.27). Стационарным режимом может считаться режим с постоянным напряжением, такие режимы представляют собой плато на рисунке 5.27. При варьировании любого контролируемого параметра источника (ток - I , мощность подогрева - P , магнитное поле - B) в течении приблизительно 40 секунд происходит стабилизация разряда. С другой стороны, в финальной части эксперимента (после 2000 сек в данном эксперименте) или же при определенных параметрах источника (I , P , B) стационарный режим не наступает либо же время установления становится значительно больше. Крайние левые точки для 100 Гс (рисунок 5.26) соответствуют периоду от 2000 до 2600 сек, т.е. измеренные значения ниже значений стационарного режима, которые так и не были достигнуты. Таким образом, основной результат – черная и синяя зависимость. В частности, для мощности 825 Вт получаем, что в поле 50 Гс напряжение выше на 7 В. Если взять в учет единственную достоверную точку в поле 100 Гс, то можно сделать аналогичный по смыслу вывод в другой форме: для реализации режима с напряжением 5,8 В в полях 0, 50 и 100 Гс необходимы мощности 820, 920 и 1020 Вт соответственно.

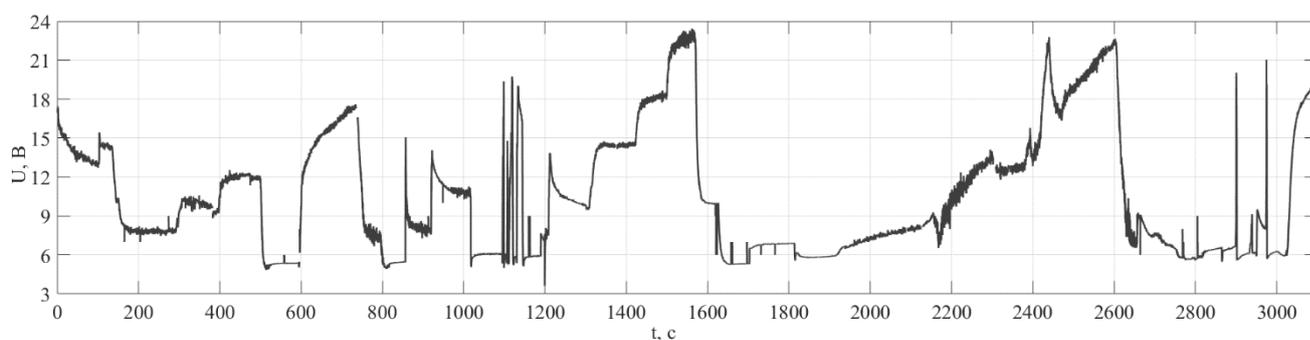


Рис. 5.27 Временная зависимость напряжения разряда от времени эксперимента иллюстрирующая стационарные и переходные режимы разряда.

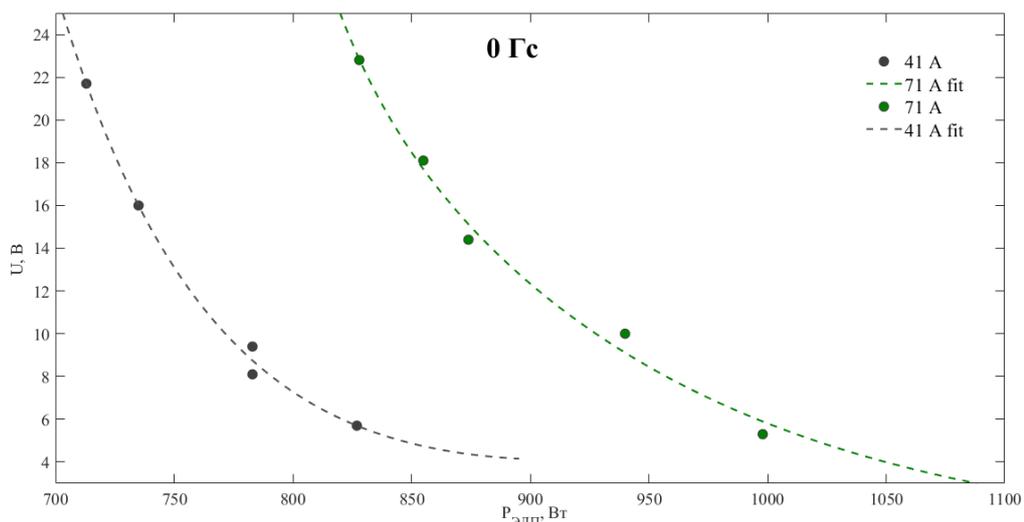


Рис. 5.28 Зависимость напряжения от мощности ЭЛП тигля для тока 41 и 71 А в отсутствие магнитного поля.

Исследовать ВАХ разряда возможно измеряя зависимости напряжения от мощности подогрева для разных значений тока. Данная методика достаточно трудоемка, так как каждая точка требует несколько около 5 минут, а время одного эксперимента 30-40 минут. Тем не менее рисунок 5.28 явно показывает, что это необходимо. На данном рисунке изображены зависимости U от P для двух величин тока в отсутствие магнитного поля. Точками для ВАХ при этом являются пересечения графиков с вертикальными линиями, задающими величину мощности подогрева тигля. К примеру, для мощностей 800, 825, 850 Вт можно найти ΔU при одинаковом ΔI . Это позволяет построить график средней производной ВАХ в зависимости от мощности подогрева (рисунок 5.29). Из приведенных данных следует, что наклон ВАХ разряда зависит от мощности подогрева тигля.

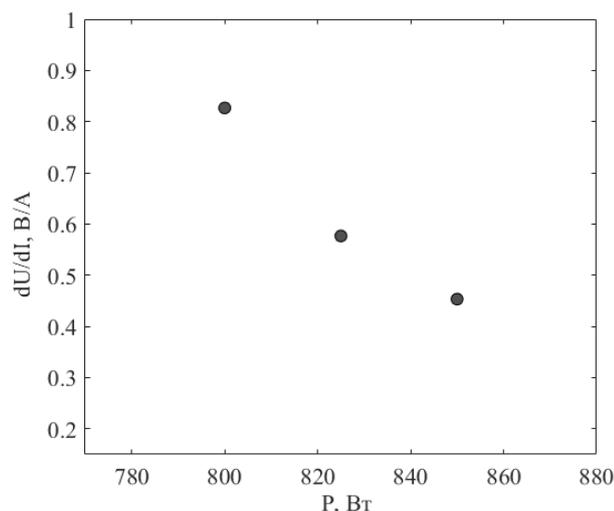


Рис. 5.29 Зависимость среднего наклона ВАХ вакуумного дугового разряда от мощности подогрева.

Влияние магнитного поля на ВАХ разряда также существенно. Интерпретация данных же становится затруднительной, т.к. увеличение магнитного поля приводит к росту напряжения, в результате чего, для реализации режимов с одинаковым напряжением разряда при большем магнитном поле требуется большая мощность подогрева. При этом разряд существует в диффузной форме при напряжениях примерно до 40 В, при больших начинается разогрев анода и около него формируется вторичная плазма. Таким образом, в разных магнитных полях ВАХ измеряются на разных мощностях, а, следовательно, сравнивать их между собой бессмысленно. Приведем данные о ВАХ в таблице 10.

U, В	5,3	9	11,7	15	5,4	8	10,8	6,8	5,8
I, А	50	60	70	75	41	51	61	70	40
T, С	1635	1635	1637	1635	1633	1633	1637	1615	1632
Рэлп, Вт	855	846	864	845	950	950	940	1008	1018
B, Гс	0	0	0	0	50	50	50	100	100

Таблица 10. Данные о ВАХ диффузной вакуумной дуги с катодом из гадолиния.

Таким образом, можно заключить что в ходе проведенных экспериментов были получены частичные данные о ВАХ разряда, но для каких-либо выводов требуется отдельное исследование ВАХ в разных режимах источника плазмы.

На рисунке 5.30 представлены фотографии разряда в режимах без магнитного поля и с магнитным полем 200 Гс при фиксированном токе и мощности ЭЛП. Видно, что появление поля приводит к поджиманию плазменного столба и его удлинению.

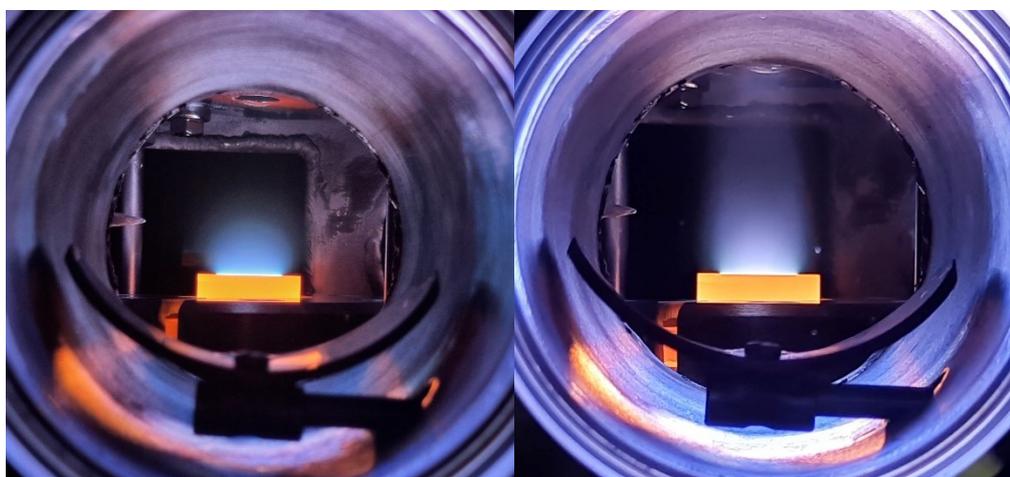


Рис. 5.30 Фотографии вакуумного дугового разряда при отсутствии магнитного поля и с магнитным полем 200 Гс.

5.4. Выводы к пятой главе

Проведены эксперименты с вакуумным дуговым разрядом с подогреваемым катодом во внешнем аорчном магнитном поле в ходе которых показано увеличение напряжения, среднего заряда и энергии ионов при увеличении величины магнитного поля. Показано, что в результате локального разогрева анода вблизи него начинает генерироваться вторичная плазма, существенно влияющая на амплитуду колебаний напряжения дуги, фактически приводя к нестационарному горению разряда. Полученные результаты были заложены в основу разработки нового источника плазмы металлов и оксидов на основе вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом.

Метод плазменной сепарации ОЯТ подразумевает присутствие магнитного поля, причем согласно актуальной конфигурации сепаратора источник плазмы сепарируемых веществ должен функционировать в аксиальном магнитном поле. Для проведения исследований вакуумного дугового разряда во внешнем аксиальном магнитном поле был создан экспериментальный стенд, включающий вакуумную систему, систему генерации магнитного поля, новый источник плазмы и диагностический комплекс.

На созданном стенде проведены эксперименты и успешно реализована диффузная форма катодной привязки тока для катода из гадолиния при температуре катода 1850–2000 К. Показано характерное влияние магнитного поля на напряжение дуги и структуру плазменного столба.

Заключение

В диссертации получены следующие основные результаты:

1. Получены новые экспериментальные данные о зависимости ионного состава плазмы диффузной вакуумной дуги с горячим керамическим катодом из CeO_2 от температуры катода (от 2200 до 2270 К) и тока разряда (40-90 А). Показано заметное присутствие ионов тугоплавкого материала тигля в потоке генерируемой плазмы (до 40%), являющееся следствием его химического взаимодействия с оксид-содержащем катодом.
2. Проведено исследование стационарности горения вакуумного дугового разряда с керамическим катодом и определено время стационарной работы (800 с при начальной массе катода 5 г и средней температуре 2200 К). Проведен анализ временной эволюции параметров источника и плазмы (напряжения разряда, ионного состава, концентрации плазмы). При варьировании температуры катода обнаружены контролируемые переходы между контрагированной и диффузной формами дуги, сопровождающиеся появлением квазистационарных катодных пятен.
3. Получены новые экспериментальные данные о параметрах плазмы вакуумной дуги с многокомпонентным катодом состоящем из смеси оксида и металла (средний заряд плазмы, температура и концентрация электронов, энергия ионов, ионный состав плазмы) для нескольких массовых соотношений компонент катодного материала ($\text{CeO}_2:\text{Cr} - 1:1$ и $3:7$, $\text{TiO}_2:\text{Cr} - 1:1$ и $3:7$) в разных режимах работы источника плазмы по току (30-90 А) и температуре тигля. На смесевом катоде $\text{CeO}_2:\text{Cr}$ реализован диффузный тип привязки тока на катоде разряда и показано, что массовое соотношение компонентов термоэмиссионного оксида и нетермоэмиссионного металла определяет характер зависимости напряжения разряда от температуры катода и, следовательно, параметры плазмы. Показано, что перевод нетермоэмиссионного оксида (TiO_2) в плазменное состояние, возможен в составе смесевого катода с нетермоэмиссионным металлом, т.к. именно наличие катодных пятен обеспечивает попадание оксида в плазмообразующую среду.
4. В результате анализа полученных данных выявлены условия реализации диффузной формы вакуумного дугового разряда с керамическим или смесевым катодом в зависимости от теплофизических параметров используемых материалов (давления насыщенных паров, работы выхода).
5. Разработан усовершенствованный метод времяпролетной масс-спектропии направленного, непрерывного потока плазмы диффузной вакуумной дуги, позволяющий проводить измерения относительного и абсолютного содержания генерируемых атомарных и

молекулярных ионов продуктов эрозии катода. На основе метода создан масс-спектрометр с разрешением равным 20.

6. Разработан, создан и успешно испытан источник плазмы на основе вакуумного дугового разряда с подогреваемым катодом (напряжение до 60 В, ток до 300 А, мощность подогрева катода 2 кВт). Создан экспериментальный стенд (в состав которого входит источник плазмы) для проведения исследований вакуумного дугового разряда во внешнем аксиальном магнитном поле (давление остаточных газов до $5 \cdot 10^{-6}$ Торр, индукция магнитного поля до 1,5 кГс).
7. Получены новые экспериментальные данные о параметрах вакуумного дугового разряда и генерируемой плазмы во внешнем арочном и аксиальном магнитном поле. Измерены зависимости напряжения разряда, среднего заряда и энергии ионов от величины арочного магнитного поля. Получены зависимости напряжения разряда от мощности подогрева катода в диапазоне 700-1050 Вт при токе 41 А в аксиальном магнитном поле величиной 0, 50, 100 Гс. Получены данные о ВАХ разряда в аксиальном магнитном поле 0, 50, 100 Гс.

В совокупности полученные результаты позволяют сделать вывод о целесообразности использования вакуумного дугового разряда в задачах, подразумевающих перевод в плазменное состояние оксид-содержащих материалов сложного состава, в частности, для метода плазменной переработки ОЯТ.

Список литературы

- [1] Melnikov A.D., Usmanov R.A., Gavrikov A.V., Polistchok V.P., Antonov N.N., Samoylov I.S., Smirnov V.P., «Temporal Evolution and Operation Peculiarities of Plasma Source Based on Vacuum Arc with CeO₂ Cathode,» *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, V. 43, p. 347–360, 2023.
- [2] Usmanov R., Melnikov A., Gavrikov A., Antonov N., Polistchok V., «Time-of-flight mass spectrometer for diagnostics of continuous plasma flow,» *Review of Scientific Instruments*, V. 93, № 71, 2022.
- [3] Polishchuk V.P., Usmanov R.A., Melnikov A.D., Yartsev I.M., «On the stability of diffuse attachment on the hot cathode of vacuum arc,» *High Temperature Material Processes*, V. 27, № 3, pp. 43-49, 2023.
- [4] Usmanov R.A., Amirov R.Kh., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Melnikov A.D., Polistchok V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Vorona N.A., Yartsev I.M., «Diffuse vacuum arc with heated cathode made of ceramic (CeO₂) and metal (Cr) mixture,» *Plasma Sources Science and Technology*, V. 29, № 1, p. 015004, 2020.
- [5] Melnikov A.D., Usmanov R.A., Amirov R.Kh., Antonov N.N., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchok V.P., Smirnov V.P., «Study of the Ion Composition of the Diffuse Vacuum Arc Plasma on a Hot Cathode by the Time-Of-Flight Method,» *Plasma Physics Reports*, V. 46, № 6, p. 611–616, 2020.
- [6] Vetrova S.B., Usmanov R.A., Antonov N.N., Melnikov A.D., Polishchuk V.P., «Parameters of the Ion Flux Generated in the Vacuum Arc with Dielectric Cathode at First Minutes after Breakdown,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 51, № 4, p. 1101–1106., 2023.
- [7] Polishchuk V.P., Usmanov R.A., Melnikov A.D., Vorona N.A., Yartsev I.M., Amirov R. K., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Antonov N.N., «Vacuum Arcs with Diffuse Cathode Attachment (Review),» *High Temperature*, V. 58, № 4, p. 476–494, 2020.
- [8] Egitto, F.D., Wang, D.N., Maydan, D., Benzing, D., «Ion Assisted Plasma Etching of Silicon-Oxides in a Multifacet System,» *Solid State Technology*, V. 24, № 71, 1981.
- [9] Popov O.A., *High Density Plasma Sources, Design, Physics and Performance*, NJ: Noyes, Park Ridge, 1995.
- [10] Horiike Y., Okano H., Yamazaki T., Horie H., «High-rate reactive ion etching of SiO₂ using a magnetron discharge,» *Japanese Journal of Applied Physics*, V. 20, p. L817, 1981.
- [11] Chapman V.J., Minkiewicz B.N., «Triode plasma etching,» *Applied Physics Letters*, V. 34, p. 192, 1979.
- [12] Limpachert R., MacKenzie K.R., «Magnetic multipole containment of large uniform collisionless quiescent plasmas,» *Review of Scientific Instruments*, V. 44, p. 726, 1973.
- [13] Мелькумов Т., Пионеры ракетной техники. Кибальчич, Циолковский, Цандер, Кондратюк, Москва: Наука, 1964.
- [14] Goddard R.H., «Method and Means for Producing Electrified Jets of Gas,» *U.S. Patent No. 1,163,037*, 1920.

- [15] Oberth H., *Wege zur Raumschiffahrt*, Munich: R. Oldenbourg, 1929.
- [16] Глушко В., *Путь в ракетной технике*, Москва: Машиностроение, 1977, p. 504.
- [17] Mazouffre S., «Electric propulsion for satellites and spacecraft: Established technologies and novel approaches,» *Plasma Sources Science and Technology*, V. 25, p. 033002, 2016.
- [18] Grondein P., Lafleur T., Chabert P., Aanesland A., «Global model of an iodine gridded plasma thruster,» *Physics of Plasmas*, V. 23, p. 033514, 2016.
- [19] Tian B., Merino M., Ahedo E., «Two-dimensional plasma-wave interaction in an helicon plasma thruster with magnetic nozzle,» *Plasma Sources Science and Technology*, V. 27, p. 114003, 2018.
- [20] Luskow K.F., Neumann P. R., Bandelow G., Duras J., Kahnfeld D., Kemnitz S., Matthias P., Matyash K., Schneider R., «Particle-in-cell simulation of the cathodic arc thruster,» *Physics of Plasmas*, V. 25, p. 013508, 2018.
- [21] Lev D.R., Alon G., «Operation of a hollow cathode neutralizer for sub100-W hall and ion thrusters,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 46, p. 311–318, 2018.
- [22] Winter J, Brandenburg R, Weltmann K-D, «Atmospheric pressure plasma jets: an overview of devices and new directions,» *Plasma Sources Science and Technology*, V. 24, p. 064001, 2015.
- [23] Bekeschus S, Schmidt A, Weltmann K-D, von Woedtke Th, «Clinical Plasma Medicine,» *The plasma jet kINPen—a powerful tool for wound healing*, V. 4, p. 19–28, 2016.
- [24] Klebes M., «Combined antibacterial effects of tissuetolerable plasma and a modern conventional liquid antiseptic on chronic wound treatment,» *Journal of Biophotonics*, V. 8, p. 382–91, 2015.
- [25] Isbary G., «Successful and safe use of 2 min cold atmospheric argon plasma in chronic wounds: results of a randomized controlled trial,» *British Journal of Dermatology*, V. 167, № 404–410, 2012 .
- [26] Heinlin J., «Randomized placebo-controlled human pilot study of cold atmospheric argon plasma on skin graft donor sites,» *Wound Repair and Regeneration*, V. 21, pp. 800-807, 2013 .
- [27] Hirst A.M., Frame F.M., Arya M., Maitland N.J., O’Connell D., «Low temperature plasmas as emerging cancer therapeutics: the state of play and thoughts for the future,» *Tumor Biology*, V. 27, p. 7021–7031, 2016 .
- [28] Vandamme M., «ROS implication in a new antitumor strategy based on non-thermal plasma,» *International Journal of Cancer*, V. 130, p. 2185–2194, 2012.
- [29] von Woedtke T., Schmidt A., Bekeschus S., Wende K., Weltmann K., «Plasma Medicine: A Field of Applied Redox Biology,» *In Vivo*, V. 33, № 4, p. 1011–1026, 2019.
- [30] «Государственная корпорация по атомной энергии «Росатом» Итоги деятельности за 2018 год, 2018.
- [31] Vorona N.A., Gavrikov A.V., Samokhin A.A., Smirnov V.P., Khomyakov Y. S., «On the possibility of reprocessing spent nuclear fuel and radioactive waste by plasma methods,» *Physics of Atomic Nuclei*, V. 78, № 14, p. 1624–1630, 2015.

- [32] Юферов В.Б., Егоров А.М., Ильичева В.О., Шарый С.В., Живанков К.И., «Плазменная сепарация ОЯТ - один из возможных путей решения проблемы замкнутого ядерного топливного цикла,» *Вопросы атомной науки и техники*, т. 2, № 84, стр. 148–151, 2013.
- [33] Долголенко Д.А., Муромкин Ю.А., «“О разделении смесей химических элементов,» *Успехи физических наук*, т. 187, стр. 1071—1096, 2017.
- [34] Морозов А., «Стационарные плазменные ускорители и перспективы их применения в термоядерных исследованиях,» *Plasma Physics and Controlled Nuclear Fusion Research - 1968 (Proceedings of an International Conference, Novosibirsk, 1-7 Aug. 1968)*, 1969.
- [35] Bardakov V.M., Ivanov S.D., Kazantsev A.V., Strokin N.A., «Results of the Main Phase of Ion Separation in the Process of Plasma-Optical Mass Separation,» *Plasma Science and Technology*, V. 17, p. 862, 2015.
- [36] Ohkawa T., Miller R. L., «Band gap ion mass filter,» *Physics of Plasmas*, V. 9, p. 5116, 2002.
- [37] Papernyi V. L., Krasov V. I., «Mass separation of a multicomponent plasma,» *Plasma Physics Reports*, V. 37, № 11, p. 988–997, 2011.
- [38] Papernyi V. L., Lebedev N. V., «Separation of the heavy and light ion components,» *Plasma Physics Reports*, V. 40, № 1, p. 78–82, 2014.
- [39] Fetterman A. J., Fisch N. J., «The magnetic centrifugal mass filter,» *Physics*, V. 18, p. 094503, 2011.
- [40] Смирнов В.П., Самохин А.А., Ворона Н.А., Гавриков А.В., «Исследование движения заряженных частиц в различных конфигурациях полей для развития концепции плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива,» *Физика плазмы*, т. 39, стр. 523–533., 2013.
- [41] Якушенков Ю., *Оптические системы фотоэлектрических устройств*, Москва: Машиностроение, 1966.
- [42] Казачков Е.А., Чепурной А.Д., *Вакуумно-дуговой переплав*, Мариуполь: ММИ, 1992.
- [43] Fridman A., Chirokov A., Gutsol A., «Non-thermal atmospheric pressure,» *Journal Of Physics D: Applied Physics*, V. 38, p. R1–R24, 2005.
- [44] Anders A., *Cathodic arcs. From fractal spots to energetic condensation*, Springer Science+Business Media, 2008.
- [45] Rakhovskii V., «Experimental Study of the Dynamics of Cathode Spots Development,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 4, № 2, pp. 81-102, 1976.
- [46] Jüttner B., «Cathode spots of electric arcs,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 34, p. R103, 2001.
- [47] Anders S., Anders A., «On modes of arc cathode operation,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 19, № 1, pp. 20 - 24, 1991.
- [48] Richter, F., Flemming, G., Kuhn, M., Peter, S., and Wagner, H., «Characterization of the arc evaporation of a hot boron cathode,» *Surface and Coatings Technology*, V. 112, pp. 43-47, 1999.

- [49] Zykova N.M., Kantsel V.V., Rakhovskii V.I., Seliverstova I.F., «Cathode and anode regions in an electric arc,» *Sov. Phys.-Tech. Phys*, V. 15, pp. 1844-1849, 1970.
- [50] Vogel N., «Burning voltage in atmospheric and vacuum short arcs of vanishing length,» *Contributions to Plasma Physics*, V. 29, pp. 11-24, 1989.
- [51] Васин А.И., Дороднов А.М. и Петросов В.А., «О существовании вакуумной дуги с распределенным разрядом на расходуемом катоде,» *Письма в ЖТФ*, т. 5, стр. 1499-1504, 1979.
- [52] Паранин С.Н., Полищук В.П., Сычев П.Е., Шабашов В.И. и Ярцев И.М., «Экспериментальное исследование теплового режима работы горячего испаряющегося катода в стационарной вакуумной дуге с диффузной катодной привязкой,» *Теплофизика высоких температур*, т. 24, стр. 422-429, 1986.
- [53] Полищук В.П., Сычев П.Е., Шабашов В.И., Ярцев И.М., «Стационарная вакуумная дуга с диффузной катодной привязкой на горячем термоэмиссионном катоде,» *Журнал технической физики*, т. 56, стр. 2233, 1986.
- [54] Бронин С.Я., Полищук В.П., Сычев П.Е., Шабашов В.И. и Ярцев И.М., *Препринт № 2-199. М.: ИВТАН*, 1986.
- [55] Dolgolenko D.A., Muromkin Y.A., «Separation of mixtures of chemical elements in plasma,» *Physics-USpekhi*, V. 60, pp. 994-1017, 10 2017.
- [56] Zweben S.J., Gueroult R., Fisch N.J., «Plasma mass separation,» *Phys. Plasmas*, V. 25, p. 090901, 9 2018.
- [57] Смирнов В.П., Самохин А.А., Ворона Н.А. и Гавриков А.В., "Исследование движения заряженных частиц в различных конфигурациях полей для развития концепции плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива," *Физика плазмы*, т. 39, стр. 523-533, 6 2013.
- [58] Жуков М.Ф., Козлов Н.П., Пустоградов А.В., Аньшаков С.С., Хвесьюк В.И., Дюжев Г.А., Дандарон Г.Б., Приэлектродные процессы в дуговых разрядах, Новосибирск: Наука, 1982.
- [59] Bolotov A., Kozyrev A., Korolev Y., «A physical mode of the low-current-density Vacuum arc,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 23, pp. 884-892, 1995.
- [60] Болотов А.В., Козырев А.В. и Королев Ю.Д., «Модель катодного слоя вакуумной дуги при немономтонном распределении потенциала в прикатодной плазме,» *Физика плазмы*, т. 19, стр. 709-803, 1993.
- [61] Benilov M. S., Benilova L.G., «Physics of spotless mode of current transfer to cathodes of metal vapor arcs,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 43, pp. 2247-2252, 2015.
- [62] Батенин В. М., Климовский И. И., Полищук В. П., Синельщиков В. А., «Стационарная вакуумная дуга с диффузной катодной привязкой на неэмитирующем хромовом катоде,» *Теплофизика высоких температур*, т. 41, стр. 670-678, 2003.
- [63] Несмеянов А.Н., Давление пара химических элементов, АН СССР, 1961.
- [64] Райзер Ю.П., Физика газового разряда, Долгопрудный, Интеллект, 2009.

- [65] Жуков М.Ф., Козлов Н.П., Пустогаров А.В., Аньшаков А.С., Хвесьюк В.И., Дюжев Г.А. и Дандарон Г.Н., Приэлектродные процессы в дуговых разрядах, Новосибирск: Изд-во ИТФ, 1982.
- [66] Полищук В.П., Сердюкова О.К. и Ярцев И.М., «О параметрах, определяющих характеристики вакуумных дуг на катодах из различных материалов,» *Журнал технической физики*, т. 63, стр. 66-74, 1993.
- [67] Амиров Р.Х., Ворона Н.А., Гавриков А.В., Лизякин Г.Д., Полищук В.П., Самойлов И.С., Смирнов В.П., Усманов Р.А. и Ярцев И.М., «Исследование вакуумной дуги с диффузной катодной привязкой как источника плазмы для плазменной сепарации ОЯТ и РАО,» *Физика плазмы*, т. 41, стр. 877-883, 2015.
- [68] Amirov R., Vorona N., Gavrikov A., Lizyakin G., Polistchok V., Samoylov I., Smirnov V., Usmanov R., Yartsev I., «Investigation of plasma flow in vacuum arc with hot cathode,» *Journal of Physics: Conference Series*, V. 550, p. 012014, 2014.
- [69] Amirov R.K., Vorona N.A., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchok V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Yartsev I.M., «Plasma jet characteristics in vacuum arc with diffused cathode spot,» *Journal of Physics: Conference Series*, V. 830, p. 012059, 5 2017.
- [70] Бронин С.Я., Полищук В.П., Сычев П.Е., Шабашов В.И. и Ярцев И.М., «Скорость испарения катода и параметры плазмы в стационарной вакуумной дуге,» *Теплофизика высоких температур*, т. 31, стр. 29-35, 1993.
- [71] Амиров Р.Х., Ворона Н.А., Гавриков А.В., Жабин С.Н., Лизякин Г.Д., Полищук В.П., Самойлов И.С., Смирнов В.П., Усманов Р.А. и Ярцев И.М., «Экспериментальное исследование процессов вакуумно-дугового испарения и ионизации вещества (гадолиния), моделирующего уран, для разработки технологии плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива,» *Труды МФТИ*, т. 6, стр. 136-145, 2014.
- [72] Amirov R.K., Vorona N.A., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchok V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Yartsev I.M., «Study of the feasibility of distributed cathodic arc as a plasma source for development of the technology for plasma separation of SNF and radioactive wastes,» *Physics of Atomic Nuclei*, V. 78, pp. 1631-1634, 12 2015.
- [73] Anders, A., Yushkov, G.Y., «Ion flux from vacuum arc cathode spots in the absence and presence of a magnetic field,» *Journal of Applied Physics*, V. 91, pp. 4824-4832, 4 2002.
- [74] Schultrich B., «Vacuum Arc Discharges with Carbon Cathodes,» в *Tetrahedrally Bonded Amorphous Carbon Films I*, Springer Berlin Heidelberg, 2018, pp. 373-452.
- [75] Veerasamy V.S., Amaratunga G.A., Weiler M., Park J.S., Milne W.I., «A distributed carbone cathodic vacuum arc,» *Surface and Coatings Technology*, V. 68/69, pp. 301-308, 1994.
- [76] Григорьев И.С. и Мейлихов Е.З., Ред., Физические величины: Справочник, Энергоатомиздат М., 1991.
- [77] Chhowalla M., Davis C.A., Weiler M., Kleinsorge B., Amaratunga G.A., «Stationary carbon cathodic arc: Plasma and film characterization,» *Journal of Applied Physics*, V. 79, pp. 2237-2244, 3 1996.

- [78] Amirov R.K., Antonov N.N., Vorona N.A., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchok V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Yartsev I.M., «The stationary vacuum arc on non-thermionic hot cathode,» *Journal of Physics: Conference Series*, V. 653, p. 012164, 2015.
- [79] Amirov R.K., Gavrikov A.V., Liziakin G.D., Polistchok V.P., Samoylov I.S., Smirnov V.P., Usmanov R.A., Vorona N.A., Yartsev I.M., «Diffuse Vacuum Arc on the Nonthermionic Lead Cathode,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 45, pp. 140-147, 1 2017.
- [80] Фоменко В.С., Эмиссионные свойства материалов. Справочник., Наукова думка. Киев., 1981.
- [81] Polistchok V.P., «Proc. Contrib. Papers 8th Int. Conf. Phys. Plasma Technol.,» в *Qualitative model of ion charge transfer on non-thermionic cathodes in vacuum arc*, Minsk, 2015.
- [82] Vetter J., Scholl H.J., Knotek O., «(TiCr)N coatings deposited by cathodic vacuum arc evaporation,» *Surface and Coatings Technology*, V. 91 из 274-75, pp. 286-291, 9 1995.
- [83] Kostrin D.K., Lisenkov A.A., Potrakhov N.N., «Formation of Biomedical Coatings with Complex Compositions Using Vacuum Arc Plasma,» *Biomedical Engineering*, V. 51, pp. 262-266, 11 2017.
- [84] Puchkarev V.F., Chesnokov S.M., «Erosion rate and voltage distribution in contracted (with cathode spot) and diffuse (spotless) low-current vacuum arcs,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 25, pp. 1760-1766, 12 1992.
- [85] Goedicke K., Scheffel B., Schiller S., «Plasma-activated high rate electron beam evaporation using a spotless cathodic arc,» *Surface and Coatings Technology*, V. 91 из 268-69, pp. 799-803, 12 1994.
- [86] Metzner C., Scheffel B., Goedicke K., «Plasma-activated electron beam deposition with diffuse cathodic vacuum arc discharge (SAD): a technique for coating strip steel,» *Surface and Coatings Technology*, V. 91 из 286-87, pp. 769-775, 12 1996.
- [87] Kajioka H., Higuchi K., Nakasone M., «Low voltage-high current discharge of Ti vapour in high vacuum,» *Thin Solid Films*, V. 256, pp. 124-135, 2 1995.
- [88] Kajioka H., «Characterization of arclike Ti vapor Plasma on the high-voltage electron-beam evaporator,» *Journal of Vacuum Science & Technology, A*, V. 15, p. 2728, 1997.
- [89] Scheffel B., Modes T., Metzner C., «Reactive high-rate deposition of titanium oxide coatings using electron beam evaporation, spotless arc and dual crucible,» *Surface and Coatings Technology*, V. 287, pp. 138-144, 2 2016.
- [90] Peng H., Zhou D., Zhang J., Guo H., Gong S., «Deposition of TiN by plasma activated EB-PVD: Activation by thermal electron emission from molten niobium,» *Surface and Coatings Technology*, V. 276, pp. 645-648, 8 2015.
- [91] Chayahara A., Mokuno Y., Kinomura A., Tsubouchi N., Heck C., Horino Y., «Metal plasma source for PBII using arc-like discharge with hot cathode,» *Surface and Coatings Technology*, V. 186, pp. 157-160, 8 2004.
- [92] Safonov V., «Plasma activated EB-deposition: Different modes of arc discharge and plasma characteristics,» *Problems of Atomic Science and Technology*, V. 111, pp. 65-72, 2017.

- [93] 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., «Diffuse vacuum arc on cerium dioxide hot cathode,» *Physics of Plasmas*, V. 25, p. 063524, 6 2018.
- [94] Самсонов Г.В., Ред., Физико-химические свойства окислов, Металлургия М., 1978.
- [95] Акопов Ф.А. и Боровкова Л.Б., «Высокоогнеупорный электропроводный керамический материал на основе диоксида церия,» *Теплофизика высоких температур*, т. 49, стр. 893-897, 2011.
- [96] Jia Sh., Shi Z., Wang L., «Vacuum arc under axial magnetic fields: experimental and simulation research,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 47, p. 403001, 2014.
- [97] Keidar M., Schulman M., «Modeling the effects of an axial magnetic field on the vacuum arc,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 28, pp. 347-50, 2001.
- [98] Chaly A.M., Logatchev A.A., Shkolnik S.M., «Cathode processes in free burning and stabilized by axial magnetic field vacuum arcs,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 27, pp. 827-35, 1999.
- [99] Schade E., Shmelev D.L., «Numerical simulation of high-current vacuum arcs with an external axial magnetic field,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 31, pp. 890-901, 2003.
- [100] Fang D., «Cathode spot velocity of vacuum arcs,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 15, pp. 833-844, 1982.
- [101] Rondeel W., «The vacuum arc in an axial magnetic field,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 8, pp. 934-942, 1975.
- [102] Zabello K.K., Logatchev A.A., Taktarov R.A., Shkolnik S.M., «Spectroscopic studies of low-current (single-spot) short vacuum arcs in axial magnetic field,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 39, pp. 1319-1323, 2011.
- [103] Jia S.L., Yang D.G., Huo X.T., Song X.C., Shi Z.Q., Wang L.J., «Investigation on the inclination of cathode plasma jets in high-current vacuum arcs in magnetic field,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 38, pp. 2914-2921, 2010.
- [104] Shkolnik S., «Secondary plasma in the gap of high-current vacuum arc: origin and resulting effects,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 31, pp. 832-846, 2003.
- [105] Wang L.J., Jia S.L., Yang D.G., Liu K., Su G.L., Shi Z.Q., «Modelling and simulation of anode activity in high-current vacuum arc,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 42, pp. 5203-5215, 2009.
- [106] Dullni E., Gellert B., Schade E., «Electrical and pyrometric measurements of the decay of the anode temperature after interruption of high-current vacuum arcs and comparison with computations,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 17, pp. 644-8, 1989.
- [107] Fu J., Jia Sh., Lan T., «Observation and Investigation of Vacuum Arc Under Various Distributed Axial Magnetic Fields,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, v. 29, № 5, pp. 734-737, 2001.
- [108] Christopher G.H., Robert A.W., *Mass Spectrometry Basics*, Boca Raton: CRC Press, 2002.

- [109] Boesl U., «Time-of-flight mass spectrometry: Introduction to the basics,» *Mass Spectrometry Reviews*, V. 36, pp. 86-109, 2016.
- [110] Cotter R.J., *Time-of-Flight Mass Spectrometry*, Washington: American Chemical Society, 1993.
- [111] Wiley, W.C., McLaren, I.H., «Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution,» *Review of Scientific Instruments*, V. 26, № 12, pp. 1150-1157, 1955.
- [112] Mamyrin B., Karataev V., Shmikk D., Zagulin V., «The mass-reflectron, a new nonmagnetic time-of-flight mass spectrometer with high resolution,» *Sov. J. Exp. Theor. Phys.*, V. 37, № 1, p. 45, 1973.
- [113] Guilhaus M., Selby D., Mlynski V., «Orthogonal acceleration time-of-flight mass spectrometry,» *Mass Spectrometry Reviews*, V. 19, № 2, pp. 65-107, 2000.
- [114] Cornish T. J., Cotter R. J., «Tandem Time-of-Flight Mass Spectrometer,» *Analytical Chemistry*, V. 65, № 8, p. 1043–1047, 1993.
- [115] Saito N., Koyama K., Tanimoto M., «Development of a Compact Time-of-Flight Mass Spectrometer with a Length of 1 m for Processing Plasma Diagnostics,» *Japanese J. Appl. Physics, Part 1 Regul. Pap. Short Notes Rev. Pap.*, V. 42, № 8, p. 5306–5312, 2003.
- [116] Sasaki K., Ura K., Kadota K., «“Diagnostocs of positive and negative ions in high-density CF4 plasma be time-of-flight mass spectrometry,» *IEEE Conference Record - Abstracts. IEEE International Conference on Plasma Science*, p. 174, 1996.
- [117] Mieno T., Kamo T., Hayashi D., Shoji T., Kadota K., «Efficient production of O⁺ and O⁻ ions in a helicon wave oxygen discharge,» *Applied Physics Letters*, V. 69, № 5, p. 617–619, 1996.
- [118] Gushenets V. I., «Inverted time-of-flight spectrometer for mass-to-charge analysis of plasma,» *Review of Scientific Instruments*, V. 85, № 2, p. 9–12, 2014.
- [119] Thompson J.O.F., Alavi S.T., Walensky J.R., Suits A.G., «Time of flight mass spectrometry with direct extraction of a uranium plasma,» *International Journal of Mass Spectrometry*, V. 445, p. 116190, 2019.
- [120] Honzawa T., Sekizawa T., Miyauchi Y., Nagasawa T., «Effects of space charges in gridded energy analyzer,» *Japanese Journal of Applied Physics*, V. 32, pp. 5748-5753., 1993.
- [121] Liebl H., *Applied Charged Particle Optics*, Springer Science & Business Media, 2008.
- [122] Chen F., «Langmuir probe analysis for high density plasmas,» *Physics of Plasmas*, V. 8, p. 3029–3041, 2001.
- [123] Meija J., Coplen T.B., Berglund M., Brand W.A., Bievre P.D., Groning M., Holden N.E., Irrgeher J., Loss R.D., Walczyk T., Prohaska T., «Isotopic compositions of the elements 2013 (IUPAC Technical Report),» *Pure and Applied Chemistry*, V. 88, pp. 293-306, 2016.
- [124] Sizikov V.S., «A Comparison of Different Methods of Separation of Continuous Overlapping Spectral Lines,» *Optics and Spectroscopy*, V. 124, p. 753–762, 2018.
- [125] Biberman L.M., Vorobev V.S., Yakubov I.T., *Kinetics of Nonequilibrium Low-Temperature Plasma*, NewYork: Consultants Bureau, 1987.

- [126] Amirov R., et.al., «Vacuum arc with a distributed cathode spot as a plasma source for plasma separation of spent nuclear fuel and radioactive waste,» *Plasma Physics Reports*, V. 41, № 10, p. 808–813, 2015.
- [127] Blumenthal R.N., Lee P.W., Panlener R. J., «Studies of the Defect Structure of Nonstoichiometric Cerium Dioxide,» *Journal of The Electrochemical Society*, V. 118, 1971.
- [128] Laux M., «Arcing at B4C-covered limiters exposed to a SOL-plasma,» *Journal of Nuclear Materials*, V. 313, pp. 62-66, 2003.
- [129] Казенас Е.К. и Цветков Ю.В., Испарение оксидов, Наука М., 1997.
- [130] Zinkevich M., Djurovic D., Aldinger F., «Thermodynamic modelling of the cerium–oxygen system,» *Solid State Ionics*, V. 177, № 11, pp. 989-1001, 2006.
- [131] Konings J., «The Thermodynamic Properties of the f-Elements and their Compounds. Part 2. The Lanthanide and Actinide Oxides,» *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, V. 14, p. 013101, 2014.
- [132] Gulbransen E.A., Andrew K.F., Brassart F.A., «Oxidation of Molybdenum 550° to 1700°C,» *Journal of the Electrochemical Society*, V. 110, № 9, pp. 952-959., 1963.
- [133] Webb W.W., Norton J.T., Wagner C., «Oxidation of tungsten,» *Journal of The Electrochemical Society*, V. 103, p. 107–111, 1956.
- [134] Tuller H.L., Nowick A.S., «Defect Structure and Electrical Properties of Nonstoichiometric CeO₂ Single Crystals,» *Journal of The Electrochemical Society*, V. 126, № 2, p. 209, 1979.
- [135] Fu Y., «The influence of cathode surface microstructure on DC vacuum arcs,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 22, № 1, p. 94, 1989.
- [136] Schmoll R., «Analysis of the interaction of cathode microprotrusions with low-temperature plasmas,» *Journal of Physics D: Applied Physics*, V. 31, № 15, p. 1841, 1998.
- [137] Семиохин И., Физическая Химия, Издательство МГУ, 2001.
- [138] Huddleston R.H., Leonard S.L., Plasma Diagnostic Techniques, Academic Press, 1965 .
- [139] Andreev A.A., Sablev L.P., Shulaev V.M., Grigorev S.N., Vacuum-arc devices and coatings, Kharkov: Publ. of National Science Center of Kharkov Institute of Physics and Technology, 2005.
- [140] Духопельников Д.В., Кириллов Д.В., Воробьев Е.В., Ивахненко С.Г., «Влияние выработки катода дугового испарителя на равномерность толщины покрытия и угловое распределение продуктов эрозии,» *Наука и образование*, т. 4, стр. 1-9, 2014.
- [141] Кириллов Д.В., Рязанов В.А., «Исследование профиля выработки катода дугового испарителя при различных токах разряда и индукции магнитного поля,» *Молодежный научно технический вестник* , № 5, 2013.
- [142] Shi Z., Song X., Wang C., Jia S., Wang L., «Cathode spots dynamic in the initial expansion stage of high-current triggered vacuum arc and the influence of axial magnetic field,» *IEEE Transactions on Plasma Science*, V. 42, № 8, pp. 2124-2130, 2014.

[143] Духопельников Д.В., Кириллов Д.В., Рязанов В.А., «Оптимизация траектории движения катодного пятна для повышения равномерности выработки катода вакуумного дугового испарителя,» *Инженерный журнал: наука и инновации*, № 10, 2013.