

04;12

Описание эксперимента по созданию и разделению газометаллической плазмы импульсного отражательного разряда

© Ю.В. Ковтун, Е.И. Скибенко, А.И. Скибенко, Ю.В. Ларин, В.Б. Юферов

Национальный научный центр „Харьковский физико-технический институт“ НАН Украины,
61108 Харьков, Украина
e-mail: Ykovtun@kpt.kharkov.ua

(Поступило в Редакцию 10 августа 2010 г.)

Решена задача экспериментальной проверки запатентованного предложения подачи рабочего (разделяемого) вещества в сепарационном магнитоплазменном устройстве на основе отражательного разряда. Показано, что распылительный механизм подачи рабочего вещества является достаточно эффективным, обеспечивающим создание плазмы плотностью $\sim 10^{14} \text{ cm}^{-3}$. Измеренные коэффициенты распыления катодного (разделяемого) вещества достигают значений $(2.8-2.6) \cdot 10^{-2} \text{ atom/ion}$ в зависимости от полного числа частиц в разряде. Наряду с этим проведена оценка минимального значения коэффициента разделения легких и тяжелых частиц во вращающейся плазме в скрещенных полях $\mathbf{E} \times \mathbf{H}$.

Введение

Ранее [1] было предложено и запатентовано устройство для разделения вещества на элементы, основу которого составляет отражательный разряд. Особенностью этого предложения является следующее:

1) катоды состоят из разделяемого вещества или содержат его;

2) процесс образования плазмы является двухстадийным: на первой стадии происходит образование предварительной плазмы путем ионизации поджигающего газа, на второй — создание основной (рабочей) плазмы из разделяемого вещества;

3) потоки и частицы предварительно образованной плазмы из поджигающего газа бомбардируют внешние поверхности катодов, обращенные в сторону разряда, и в разряд, таким образом, поступают распыленные частицы материала катода (разделяемого вещества).

Принципиальная схема магнитоплазменного сепарационного устройства [1] на основе отражательного разряда представлена на рис. 1. Устройство содержит вакуумную камеру 1, узел подачи поджигающего газа 2, источник плазмы в виде анодно-катодной электродной системы 3, 4, размещаемой в продольном магнитном поле пробочной конфигурации. Катоды выполнены из разделяемого вещества или содержат его. Анодом служит корпус вакуумной камеры 1, внутри нее в межкатодном пространстве перед каждым катодом установлены также дополнительные аноды 4.

Предварительная плазма в объеме вакуумной камеры 1 образуется путем ионизации поджигающего газа в отражательном разряде с холодными катодами 3, для которого характерно многоразовое прохождение межкатодного пространства электронами, которые производят ионизацию нейтральных частиц. Разряд возникает в объеме вакуумной камеры 1 при подаче высокого напряжения на разрядный промежуток анод-катод. При этом в плазме отражательного разряда, который находится в

скрещенных электрическом и магнитном полях, когда ионная циклотронная частота становится кратной относительно угловой частоты вращения компонент плазмы, происходит возбуждение продольных плазменных колебаний на частоте, близкой к ионной циклотронной частоте со значительно большей амплитудой и направлением распространения поперек магнитного поля.

Развитие резонансной циклотронной неустойчивости сопровождается эффективным нагревом ионной компоненты плазмы. После этого потоки и частицы вновь образованной предварительной плазмы бомбардируют внешние поверхности катодов 3, обращенные к разряду, и в разряд попадают частицы распыляемого материала катода, т.е. разделяемого вещества, где они ионизируют

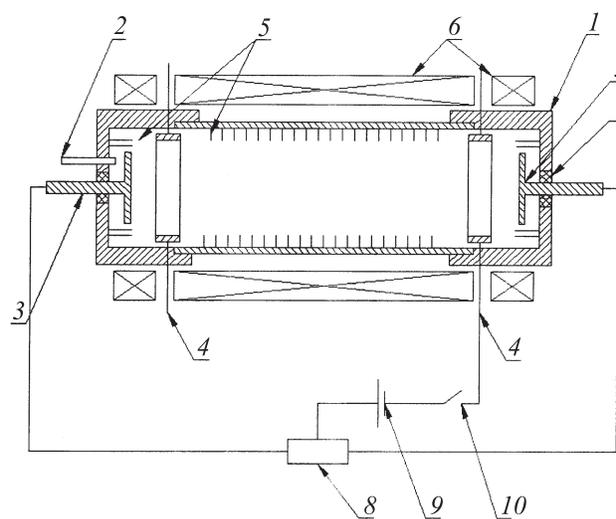


Рис. 1. Схема запатентованного устройства для разделения вещества на элементы на основе отражательного разряда: 1 — вакуумная камера, 2 — узел подачи поджигающего газа, 3 — катод, 4 — анод, 5 — приемник плазменного потока, 6 — магнитная система пробочной конфигурации, 7 — изолятор, 8 — сопротивление, 9 — источник высокого напряжения, 10 — ключ.

ся, селективно нагреваются и потом высаживаются на приемных пластинах 5. В [1] по сути дела была сформулирована концепция создания такого устройства, а ее частичная экспериментальная проверка будет проведена в настоящей работе. Одним из ключевых моментов должна стать проверка эффективности поступления рабочего вещества в разряд за счет процессов распыления катодных поверхностей потоками частиц и плазмы разряда, в том числе количества рабочего вещества (суммарно и в единицу времени или за импульс), оценка порога распыления для пары мишень-ион и его соответствия условиям эксперимента по энергии ионов, участвующих в процессе распыления.

При взаимодействии плазмы с поверхностью твердого тела происходит целый ряд процессов [2], таких как эмиссия электронов при взаимодействии частиц с поверхностью, внедрение, отражение и стимулированная десорбция частиц, изменение приповерхностного слоя, изменение зарядового состояния ионов, распыление, блистеринг и др. Одним из основных процессов, приводящих к разрушению материала катода и соответственно поступлению его в плазму, является распыление. Основной характеристикой процесса распыления является коэффициент распыления Y , зависящий от заряда и массы налетающего иона, его энергии, угла падения, а также от материала и температуры мишени. Этот процесс имеет энергетический порог распыления, который можно оценить из соотношения [2]:

$$\varepsilon_{tr} = \begin{cases} \frac{U}{\lambda(1-\lambda)} & \text{при } M_i \leq 0.3 M_A, \\ 8U(M_i/M_A)^{2.5} & \text{при } M_i \geq 0.3 M_A, \end{cases} \quad (1)$$

где ε_{tr} — пороговая энергия распыления, U — энергия связи поверхностных атомов, M_i и M_A — масса налетающих ионов и атомов мишени, $\lambda = 4M_i M_A / (M_i + M_A)^2$.

Используя уравнение (1), определим пороговую энергию распыления для пары мишень-ион в виде Ti-H⁺ для диапазона энергии связи поверхностных атомов 1–5 eV, что характерно для межатомных связей, например ковалентных, ионных и металлических. В итоге получаем для указанного энергетического диапазона при $U = 1$ eV $\varepsilon_{tr} \approx 13.6$ eV, при $U = 5$ eV $\varepsilon_{tr} \approx 68$ eV. Изменение коэффициента распыления Y от материала мишени проявляется, во-первых, в зависимости от массы и атомного номера атомов мишени, во-вторых, в зависимости от энергии связи U , которая обычно полагается равной энергии сублимации, отнесенной к одному атому. Минимальные значения коэффициента распыления имеют мишени из атомов с незаполненными электронными оболочками: С ($Z_A = 6$, $Y \sim 5.4 \cdot 10^{-2}$ atom/ion), Ti ($Z_A = 22$, $Y \sim 6.2 \cdot 10^{-2}$ atom/ion), А ($Z_A = 23$, $Y \sim 5.6 \cdot 10^{-2}$ atom/ion), Zr, Mo, Nb, Ta, W. Максимальные коэффициенты распыления благородных металлов: Cu ($Z_A = 29$, $Y \sim 21 \cdot 10^{-2}$ atom/ion), Ag, Au. Кроме того, максимальное распыление вызывают ионы благородных газов.

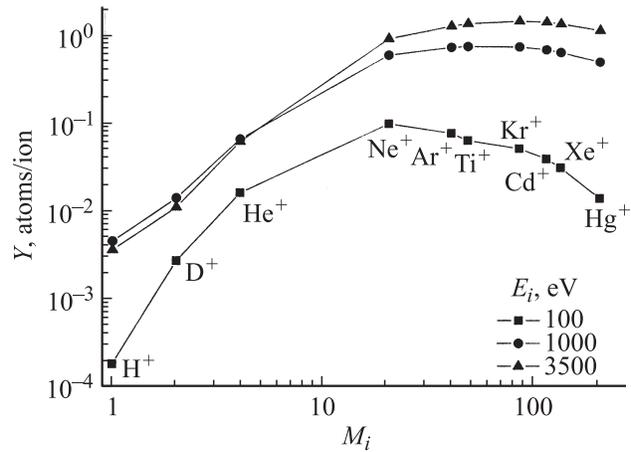


Рис. 2. Зависимость коэффициента распыления Ti от атомного веса ионов, падающих на распыляемую поверхность, для различных энергий ионов.

На рис. 2 в обобщенном виде представлены литературные данные [2,3] по коэффициентам распыления Ti под воздействием ионов H⁺, D⁺, He⁺, Ne⁺, Ar⁺, Ti⁺, Cd⁺, Xe⁺, Hg⁺ для различных энергий.

Экспериментальные результаты

Частичная экспериментальная проверка запатентованных решений была проведена на установке „МАКЕТ“, представлявшей собой импульсный отражательный разряд [4,5]. Ее параметры следующие: объем вакуумной (разрядной) камеры $\sim 63 \cdot 10^3$ см³; конфигурация магнитного поля — пробочная, максимальная магнитная индукция $B \leq 0.9$ Т, длительность — 18 мс; диапазон рабочих давлений $(1-8) \cdot 10^{-3}$ Па; разрядное напряжение $U_{dis} \leq 4$ кВ, разрядный ток ≤ 1.8 кА, длительность ~ 1 мс. В качестве поджигающего газа использовались H₂ и Ar, а также газовая смесь (Kr — 88.9, Xe — 7, N₂ — 4, O₂ — 0.1%). Катоды были выполнены из композиционного материала, а именно: с напыленным титаном вакуумно-дуговым способом [6], покрытие поликристаллическое толщиной до 5 μ m.

В качестве основных средств диагностики плазмы использовались различные СВЧ методики (интерферометрия, пространственная и корреляционная рефлектометрия), оптическая спектроскопия в диапазоне длин волн $\lambda = 220-680$ nm. Проведенные измерения максимальной плотности плазмы N_p^{max} в разряде выполнены на длинах волн зондирующего сигнала $\lambda = 8$ и 4 mm, чему соответствуют значения критической плотности 1.8 и $7 \cdot 10^{13}$ см⁻³ (N_p^{max}), в то же время оценки и экстраполяционные построения указывают на достижение плотности $N_p^{max} \sim 1 \cdot 10^{14}$ см⁻³ и более. Оптическая спектроскопия показана для газометаллических плазм H₂ + Ti, Ar + Ti, (Kr-Xe-N₂-O₂) + Ti наличие не только спектральных линий, соответствующих набору частиц поджигающего газа и материала катода, то и частиц

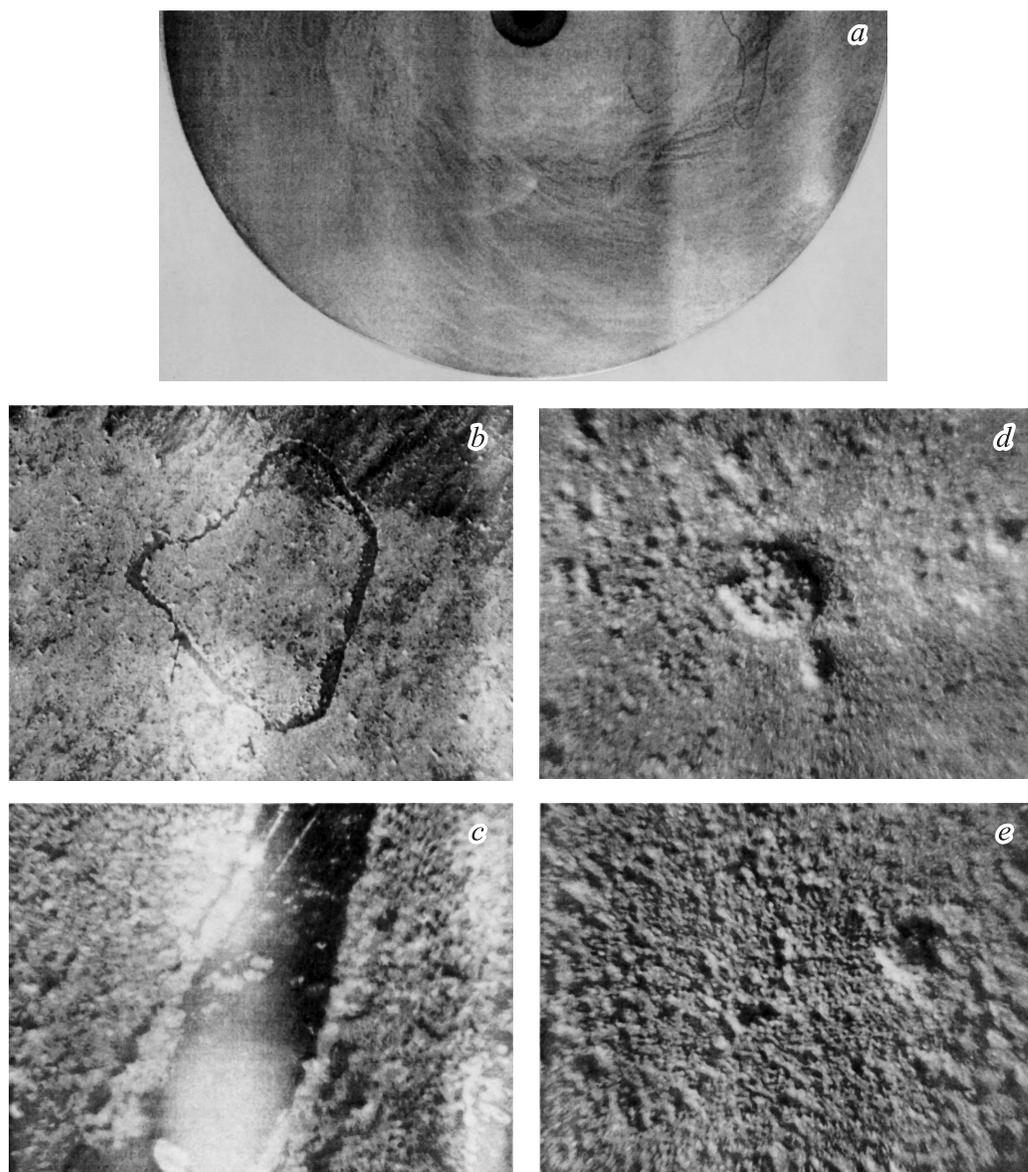


Рис. 3. Внешний вид рабочей поверхности композитного катода: *a* — обзорная фотография 1/2 поверхности катода; *b* — фрагмент рабочей поверхности размером 4×5.8 mm при 25-кратном увеличении; *c* — фрагмент дуговой дорожки при 120-кратном увеличении; *d, e* — фрагменты различных участков катодной поверхности после максимального корпускулярно-плазменного воздействия полным числом импульсов 3257 при 120-кратном увеличении.

конструкционных элементов установки внутреннего размещения. Количество титана в разряде определялось путем сравнения расчетных значений $\langle \sigma v \rangle_{\text{eff}}$ эффективной скорости ионизации газопаровой смеси с различным процентным содержанием титана с экспериментально полученными для образованной плазмы [7], при этом процентное содержание титана в разряде находилось на уровне 40–50% и более.

Отдельно остановимся на балансе частиц, распыляемых с поверхности катодов и поступающих в разряд, и полного числа частиц в плазменном столбе, что позволит в конечном итоге определить расход катодного материала от импульса к импульсу. В данном разряде

поступление частиц катода (титана) может происходить за счет процесса распыления, а также блистиринга [8] и катодных дуг [9] (рис. 3). На рис. 3, *a* в реальном масштабе приведена фотография половинки рабочей поверхности катода, на которой достаточно четко отображены следы катодных дуг. Дорожки (треки), образованные дугой, носят замкнутый характер, длиной до нескольких сантиметров и шириной до миллиметра. На рис. 3, *b* представлен фрагмент рабочей поверхности размером 4×5.8 mm при 25-кратном увеличении. Ширина дуговой дорожки составляет около $200 \mu\text{m}$. Ее фрагмент более четко представлен на рис. 3, *c* при 120-кратном увеличении. По этим данным, поперечник дугового

канала составляет 170–240 μm . Эти данные важны и необходимы для оценок расхода катодного вещества за импульс или серию импульсов.

Рис. 3, *d* и рис. 3, *e* иллюстрируют действие других механизмов поступления катодного вещества в разряд, на что указывалось ранее. Количество титана, поступающего в разряд за счет процессов распыления, катодных дуг, блистиринга (см. рис. 3), определялось также объемно-массовым способом, который заключался в определении размеров (площади) той части рабочей поверхности катодов, где напыленный титан был полностью десорбирован. Величина десорбированной части поверхности катодов S_D могла достигать от нескольких единиц до десятков процентов от их полной площади рабочих поверхностей S_C . Исходя из этого можно было оценить общее количество титана, поступающего в разряд. Отметим, что такая оценка дает минимальную величину поступления титана в разряд, поскольку не учитывается частичная десорбция титана с остальных (недесорбированных полностью) участков рабочей поверхности катодов. При средней толщине напыления $\delta = 5 \mu\text{m}$ на торцевой поверхности одного катода площадью 78.5 cm^2 сосредоточено 176.6 mg Ti. Полное количество произведенных импульсов плазменного разряда равнялось 3257, причем 50% их получено на водороде, 35% — на аргоне, 15% — на газовой смеси (Kr, Xe, N₂, O₂). Принимая во внимание данные рис. 1, можно сказать, что вклад водородных импульсов в общем результате распыления катодного материала будет минимальным.

Оценим расход напыленного катодного материала (Ti), который оказался равным 0.108 mg/impulse ($1.08 \cdot 10^{-4} \text{ g/impulse}$) или в размерности концентрации частиц при 100% десорбции всего напыленного на торцевые поверхности катодов слоя Ti получаем $4.44 \cdot 10^{21}$ (particle/discharge) или с учетом количества произведенных импульсов и объема, занимаемого плазмой, около 10^4 cm^3 , $1.35 \cdot 10^{14} \text{ particle/impulse cm}^3$. Наряду с этим измеренные радиальные зависимости плотности плазмы позволяют оценить реальное полное число частиц на единицу длины пробочной конфигурации магнитного поля:

$$N_{\Sigma} = \int_s N(S) ds(r). \quad (2)$$

После подстановки $ds(r) = 2\pi r dr$ и $N(r) = N_{\text{max}}[1 - (r/r_{\text{max}})^{\gamma}]$ [4] получаем в окончательном виде

$$N_{\Sigma} = \pi N_{\text{max}} r_{\text{max}}^2 \frac{\gamma}{\gamma + 2}. \quad (3)$$

Результаты оценок полного числа частиц на единицу длины пробкотрона приведены в таблице. Видно, что полное число частиц увеличивается с ростом N_{max} , r_{max} и γ . С учетом того что по ранее определенным данным концентрация Ti в разряде достигает $\sim 50\%$ и более, то средняя степень выработки внешних торцевых поверхностей катодов с учетом условий эксперимента изменяется от 6 до 35%.

$N_{\text{max}}, \text{ cm}^{-3}$	$r_{\text{max}}, \text{ cm}$	γ	N_{Σ}	$S_D/S_C, \%$
$1.7 \cdot 10^{13}$	4	10	$9.26 \cdot 10^{16}$	6.8
$1 \cdot 10^{14}$	4	10	$5.45 \cdot 10^{17}$	40.1
$1 \cdot 10^{14}$	5	6	$7.67 \cdot 10^{17}$	56.4
$1 \cdot 10^{14}$	5	10	$8.5 \cdot 10^{17}$	62.5

На основании полученных данных проведена оценка величины коэффициента распыления катодного материала (Ti) под действием частиц и потоков разрядной плазмы. Оценивалось ожидаемое максимально возможное в данных условиях эксперимента значение коэффициента распыления Y_{max} как отношение числа частиц, поступающих в разряд, к числу частиц, участвующих в процессе распыления со стороны плазмы разряда, а также текущие значения коэффициента распыления Y_{curr} для различных параметров плазмы разряда, нормированные на полное число импульсов одной серии.

Результаты проведенных оценок выглядят следующим образом; $Y_{\text{max}} = 0.6 \text{ atom/ion}$, $Y_{\text{curr}}^1 = 2.83 \cdot 10^{-2} \text{ atom/ion}$ при $N_{\text{max}} = 1.7 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-3}$, $r_{\text{max}} = 4 \text{ cm}$ и $\gamma = 10$; $Y_{\text{curr}}^2 = 0.261 \text{ atom/ion}$ при $N_{\text{max}} = 1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-3}$, $r_{\text{max}} = 5 \text{ cm}$ и $\gamma = 10$ (см. также рис. 4). Полученные данные по коэффициенту распыления Ti частицами и потоками плазмы находятся в удовлетворительном согласии с литературными данными [2,3].

С помощью методов корреляционной СВЧ рефлектометрии [10] были определены частота и скорость вращения плазменных слоев с плотностью $N_p \geq N_{\text{crit}}$ для данной длины волны зондирующего сигнала. Во вращающейся плазме происходит пространственное разделение ионов за счет центробежных эффектов. Сепарация ионов будет происходить до тех пор, пока центробежная сила, действующая на единицу объема, не уравновесится градиентом давления. Коэффициент разделения α при

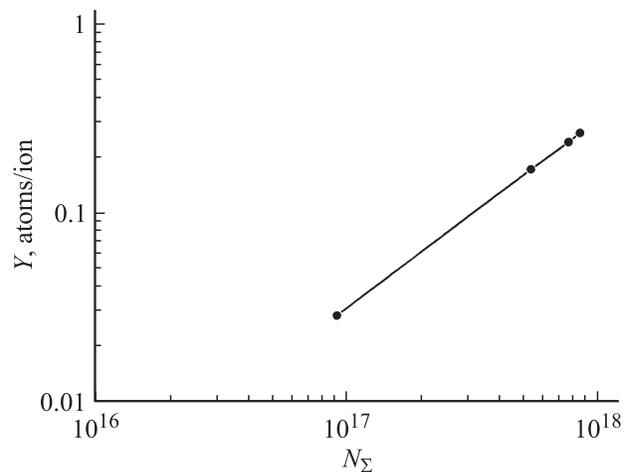


Рис. 4. Зависимость коэффициента распыления катодного материала (Ti) ионами плазмы от полного числа частиц в разряде.

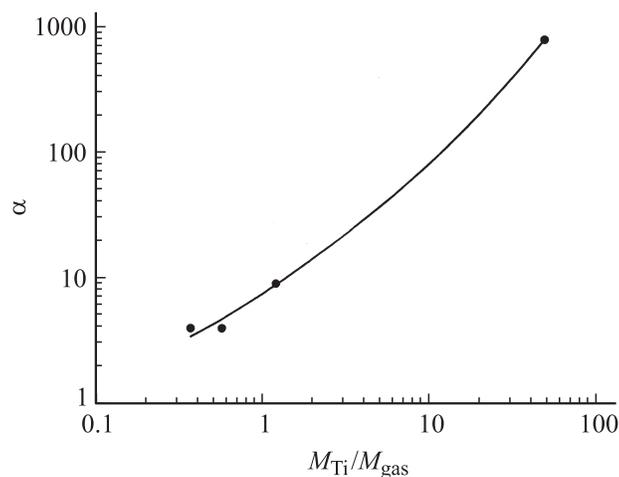


Рис. 5. Зависимость коэффициента разделения газометаллической плазменной смеси от отношения массовых чисел частиц металла (Ti) и поджигающего газа, используемых в разряде.

этом определяется как [11]:

$$\alpha = \exp(\Delta m v_{rot}^2/2kT), \quad (4)$$

где Δm — разность масс выделяемых элементов (изотопов), v_{rot} — скорость вращения, T — температура плазмы, k — постоянная Больцмана.

Используя экспериментально полученную скорость вращения плазмы, которая достигает значений $2.3 \cdot 10^6$ cm/s для состава $H_2 + Ti$, для $2.3 \cdot 10^6$ cm/s состава $Ar + Ti$ и $8.1 \cdot 10^5$ cm/s для смеси $Kr-Xe-N_2-O_2 + Ti$ и принимая $T \sim 10$ eV, получаем минимальную величину коэффициента α разделения частиц плазмы бинарного состава $(H_2 + Ti) \geq 10^3$. Достаточно высокие значения коэффициента разделения достигаются за счет большой разницы массовых чисел разделяемых компонент и высокой скорости вращения. Для газометаллической смеси $Ar + Ti$, $Kr-Xe-N_2-O_2-Ti$ получены значения коэффициента α равные соответственно 9 и 4. На рис. 5 приведена зависимость $\alpha = f(M_{Ti}/M_{gas})$, где M_{Ti} — масса атома Ti, M_{gas} — масса частиц поджигающего газа.

Выводы

1. Проведенный анализ и эксперименты подтверждают обоснованность концепции создания устройства для разделения вещества на элементы, в том числе отработанного ядерного топлива и радиоактивных отходов, на основе отражательного разряда, сформулированной в патенте [1], с достаточно высокой производительностью его переработки, около $30 \cdot 10^3$ kg/year.

2. Экспериментально показано, что распылительный способ подачи рабочего вещества является достаточно эффективным механизмом, обеспечивающим создание плазмы плотностью $\sim 10^{14}$ cm⁻³. Измеренные величины коэффициента распыления Ti лежат в диапазоне

$2.8 \cdot 10^{-2} - 0.26$ atoms/ion, что соответствует литературным данным.

3. Экспериментально показано также, что коэффициенты разделения вещества на составляющие может быть достаточно высоким $\geq 10^3$.

Список литературы

- [1] Скибенко С., Ковтун Ю.В., Скибенко А.И., Юферов В.Б. Пат. UA38780 Украина, МПК (2006) B01D 59/00; Заявл. 09.07.2008; Оpubл. 12.01.2009. Бюл. № 1.
- [2] Энциклопедия низкотемпературной плазмы / Под ред. В.Е. Фортова. М.: Наука, 2000. Т. 3. 574 с.
- [3] Yamamura Y, Tawara H. Energy dependence of Ion-Induced Sputtering Yields from Monoatomic Solids at Normal Incidence. NIFS-DATA-23. National Institute for Fusion Science, Nagoya, Japan, 1995. 114 p.
- [4] Скибенко Е.И., Ковтун Ю.В., Скибенко А.И., Онищенко И.Н., Юферов В.Б. // ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 9. С. 138.
- [5] Ковтун Ю.В., Ларин Ю.В., Скибенко А.И., Скибенко Е.И., Шаповал А.Н., Юферов В.Б. // ЖТФ. 2010. Т. 80. Вып. 5. С. 143.
- [6] Андреев А.А., Саблев Л.П., Шулаев В.М., Григорьев С.Н. Вакуумно-дуговые устройства и покрытия. Х.: ННЦ ХФТИ, 2005. 236 с.
- [7] Ковтун Ю.В., Скибенко С.И., Юферов В.Б. // Вісник Харківського Національного Університету ім. В.Н. Каразіна № 794. Серія фізична: Ядра, частинки, поля. 2008. Т. 1(37). № 794. С. 115.
- [8] Kornienko L.A., Skibenko A.I., Voitsenya V.S., Nikolaenko A.A., Pokhodyashchij V.I., Fomin I.P. // Plasma Devices and Operations. 1996. Vol. 4. P. 305.
- [9] Holliday J.H., Isaacs G.G. // Brit. J. Appl. Phys. 1966. Vol. 17. P. 1575.
- [10] Pavlichenko O.S., Skibenko A.I., Fomin I.P. et al. // Proc. 5th Int. Workshop on Reflectometry. Tokio, Japan. 2001. P. 85.
- [11] Krishnan M. // Phys. Fluids. 1983. Vol. 26. P. 2676.