

03;04

Определение малых концентраций молекул воды в плазме методами актинометрии и моделирования

© А.В. Бернацкий¹, В.Н. Очкин^{1,¶}, И.В. Кочетов^{1,2}¹ Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва² ГНЦ РФ „Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований“, Москва, Троицк

¶ E-mail: ochkin@sci.lebedev.ru

Поступило в Редакцию 4 апреля 2017 г.

Исследуются корреляции концентраций молекул H_2O и атомов водорода в плазме влажных инертных газов. Результаты измерений концентрации паров воды сравниваются с результатами моделирования плазмохимических процессов. Обсуждается масштабирование результатов.

DOI: 10.21883/PJTF.2017.19.45084.16813

Присутствие молекул H_2O в плазме может влиять на параметры электроразрядных установок. Их детектирование представляет практический интерес, к этой проблеме привлечены в том числе спектроскопические методы [1,2]. Требования к чувствительности особенно повысились в связи с созданием новых термоядерных реакторов, в частности международного экспериментального термоядерного реактора (ИТЭР) [3], и это потребовало разработки специальных приемов.

Среди различных концепций в работах [4–6] предложены спектральные методы с использованием так называемых „промежуточных“ актинометров, которые являются фрагментами распада H_2O . Одним из удобных фрагментов могут быть атомы Н. Концентрации Н могут быть в свою очередь определены с помощью „основных“ актинометров, в качестве которых можно использовать малые добавки атомов инертных газов в плазмообразующий газ.

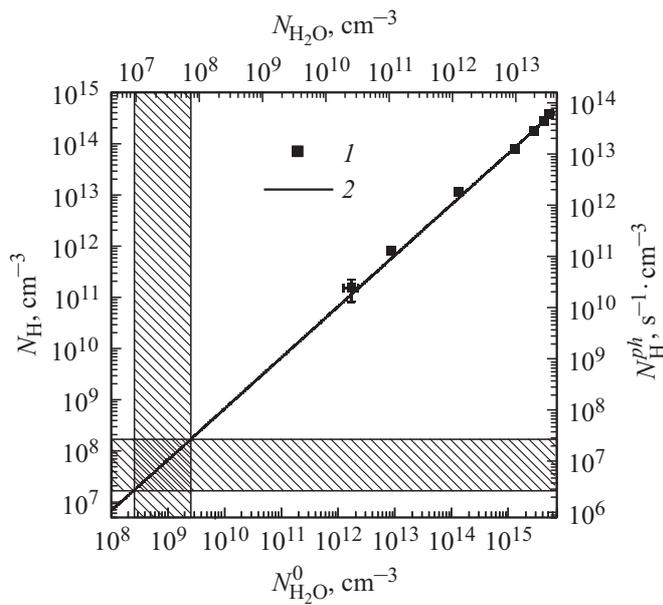
Задача настоящей работы — измерения и расчеты концентраций атомов водорода N_H в плазме на основе инертных газов с добавками паров воды $N_{H_2O}^0$, варьируемыми в широких пределах.

Индекс 0 в $N_{\text{H}_2\text{O}}^0$ обозначает количество молекул, попавших в плазму извне при натекании из охлаждающих контуров или в виде добавок к инертному плазмообразующему газу, которое отличается от количества молекул воды $N_{\text{H}_2\text{O}}$ в плазме из-за диссоциации. Измерения проводились на установке с полым катодом, описанной в работе [5], при токе 230 мА. Использовалась смесь He:Xe:Ar (99:1:1) 0.6 mbar с добавками H_2O . Интенсивности линий актинометров Xe (823.16 nm) и Ar (751.46 nm) использовались для измерения концентраций H_2O (по методике [7] при сравнении с интенсивностями излучения OH (306 nm) и H (656.28 nm) соответственно). Температура нейтрального газа плазмы определялась по вращательной структуре полос „холодного“ гидроксила [7] и в условиях измерений составила 430 ± 30 К. Функция распределения электронов по энергиям (ФРЭЭ) и концентрация электронов определялись с помощью зондовых измерений.

Остаточное давление откачки в разрядной камере составляло $8 \cdot 10^{-7}$ mbar. Минимальное количество добавок молекул воды, контролируемое калиброванными датчиками (Balzers IKR250 — диапазон давлений 10^{-9} – 10^{-2} mbar — и Pfeiffer TPR280 — диапазон 10^{-4} – 10^{-3} mbar), ограничивалось $N_{\text{H}_2\text{O}}^0 = (10 \pm 3) \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-3}$, т. е. $\sim 4 \cdot 10^{-5}$ mbar.

На рисунке точками 1 показаны измеренные концентрации атомов водорода N_{H} и молекул воды $N_{\text{H}_2\text{O}}$ в зависимости от концентрации молекул $N_{\text{H}_2\text{O}}^0$, добавленных в плазмообразующий газ. Линией 2 на рисунке представлены результаты расчета. Для расчета концентраций атомов H и установившейся концентрации молекул H_2O использовалась однородная кинетическая модель, описанная в работе [5]. В модели учитывались следующие компоненты: He, H_2O , O_2 , H_2 , H_2O_2 , HO_2 , OH, H и O. Включены процессы диссоциации молекул H_2O , O_2 и H_2 электронами плазмы, химические реакции в объеме и гетерогенная рекомбинация атомов O, H и радикалов OH на поверхности стенок.

Константы скорости диссоциации молекул H_2O , O_2 и H_2 электронным ударом рассчитывались путем интегрирования соответствующих сечений диссоциации с ФРЭЭ. Вид ФРЭЭ оказывается близким к максвелловскому с той же средней энергией, которая использовалась в расчетах ($T_e = 9 \text{ eV}$). Погрешность расчетных констант, связанная с такой аппроксимацией, не превышала 5%. Концентрация электронов ($n_e = 109 \text{ cm}^{-3}$) бралась непосредственно из зондовых измерений.



Концентрации атомов водорода, молекул воды в плазме и плотность числа фотонов в линии $H\alpha$ в зависимости от концентрации молекул воды, добавленных в плазмообразующий газ. 1 — измерения, 2 — расчет.

Инертные актинометры Ar, Xe ввиду малости концентраций в кинетической модели не учитывались. Основанием для этого являются оценки величин возможного влияния как через изменение свойств разряда, так и за счет участия этих атомов в трехчастичных реакциях. Расчет баланса энергии электронов в смеси He:Xe:Ar (99:1:1) показал, что на возбуждение электронных уровней и ионизацию атомов Xe и Ar идет в общей сложности до 17% от мощности разряда. При добавлении паров воды эта доля еще уменьшается и составляет 10% при $[H_2O] = 10^{15} \text{ cm}^{-3}$. Добавки менее 10^{14} cm^{-3} на энергетический баланс не влияют. В объемных трехчастичных реакциях, включенных в модель ($H + H + M \leftrightarrow H_2 + M$, $OH + O + M \leftrightarrow HO_2 + M$, $OH + OH + M \leftrightarrow H_2O_2 + M$, $O + H + M \leftrightarrow OH + M$, $H + O_2 + M \leftrightarrow HO_2 + M$, $O + O + M \leftrightarrow O_2 + M$), константы скоростей при $M = \text{He, Ar или Xe}$ различаются в пределах 2–3 раз (ссылки на константы см. в [5]), а

концентрации Хе и Аг на два порядка меньше, чем концентрация Не. К тому же, как показал анализ результатов расчетов, основной канал рекомбинации — гетерогенная релаксация на поверхности.

Как известно [8], для молекулы O_2 существует два канала диссоциации электронным ударом с порогом 5.6 и 8.4 eV. В первом канале образуются два атома О в основном состоянии, во втором один из атомов находится в электронно-возбужденном состоянии $O(^1D)$. В кинетической схеме величина константы диссоциации бралась равной сумме констант для двух каналов. Для решения системы кинетических уравнений использовалась программа Chemical Workbench (CWB 4.0.9150, www.kintech.ru) [9]. Анализ результатов вычислений показал, что в условиях эксперимента разрушение молекул H_2O , O_2 и H_2 происходит за счет диссоциации электронами плазмы, а их образование — в процессе гетерогенной рекомбинации компонентов газа.

Скорости гетерогенной рекомбинации зависят от материала поверхности, его состояния, температуры и др. В используемой модели эти скорости являются подгоночными для оптимального соответствия расчета концентраций всех химических компонентов плазмы измерениям. Тем самым эффективно учитываются такие факторы, как геометрия поверхности, ее состояние, температура, наличие переотражений частиц без рекомбинации.

Данные рисунка как для измерений, так и для расчетов соответствуют времени 1 min после зажигания разряда, когда устанавливается динамическое равновесие концентраций всех частиц (расчет показывает, что равновесие устанавливается уже после нескольких секунд, но для проведения одного цикла измерений требуется 60 s). Видно хорошее согласие расчетов и измерений в области условий их совместного использования.

Для вакуумных систем при описании поступления примесей принято использовать величину потока газа Q

$$Q = \frac{\Delta(PV)}{\Delta t}, \quad (1)$$

где P — давление в системе, V — объем системы, Δt — время, за которое происходят изменения.

Если объем V фиксирован и за время Δt изменяется только давление P , то исходя из (1) и универсального газового закона $P = NkT$

(где N — концентрация частиц, k — постоянная Больцмана, T — температура газа в К) измеряемый поток будет равен

$$Q = \frac{\Delta N}{N_1} \frac{1}{\Delta t} V \frac{T}{273}, \quad (2)$$

где N_1 — концентрация частиц при давлении 1 Па и температуре 273 К. В проекте ИТЭР допустимым потоком паров воды считается $Q \sim 10^{-7} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$. Используем данные наших измерений. В эмиссионных измерениях объем V совпадает с наблюдаемым объемом светящейся плазмы и составляет около 30 см^3 . Изменение концентрации частиц в серии последовательных измерений свидетельствует о наличии потока их поступления, и его минимальная величина определяется чувствительностью измерений концентраций. В нашем случае, учитывая точность контроля добавок H_2O в исходную смесь газов и время $\Delta t = 60 \text{ с}$ между возможными последовательными измерениями, найдем, что минимальный регистрируемый поток паров воды, втекающих в плазменный объем извне, $Q_{\text{H}_2\text{O}}^0 = 2 \cdot 10^{-9} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$, а поток протекания их через плазму $Q_{\text{H}_2\text{O}} = 5 \cdot 10^{-11} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$.

Можно, таким образом, заключить, что предлагаемый актинометрический метод измерений потоков паров воды по концентрациям атомов водорода в совокупности с моделью реакций с превышением обеспечивает диагностические требования проекта ИТЭР. Следует, однако, учесть, что реализуемый в нашей экспериментальной модельной установке объем плазмы существенно меньше, чем в реакторе ($\sim 1000 \text{ м}^3$). Для масштабирования уместны следующие оценки, основанные на проведенных в данной работе расчетах и измерениях.

Условие $Q \sim 10^{-7} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ соответствует скорости прихода частиц примесей в объем $\Gamma = 2.65 \cdot 10^{13} \text{ с}^{-1}$. В проекте ИТЭР предполагается, что в реакторе в целом поддерживается низкое давление $\sim 10^{-5} - 10^{-4} \text{ Па}$ или менее. Тогда в случае локальной течи молекулы воды будут иметь концентрацию $N_{\text{H}_2\text{O}}^0 = \Gamma \tau$. Вблизи стенки при комнатной температуре время τ вылета частиц из локального объема 1 см^{-3} составляет $\sim 10^{-5} \text{ с}$ и в этой зоне $N_{\text{H}_2\text{O}}^0 \sim 3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3}$. Для $Q \sim 10^{-7} - 10^{-6} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ эта область концентраций $N_{\text{H}_2\text{O}}^0$, $N_{\text{H}_2\text{O}}$ и N_{H} на рисунке заштрихована. При равных значениях Q концентрации проникающих через стенку камеры молекул воды в реальном реакторе могут быть существенно меньше, чем в камере, используемой в наших

экспериментах, и для контроля их концентраций по свечению $H\alpha$ потребуется достаточно высокая световая чувствительность. На правой оси ординат отложены плотности числа фотонов $N_{H\alpha}^{ph}$ в линии $H\alpha$

$$N_{H\alpha}^{ph} = N_H n_e < v_e \sigma_{e,H\alpha} > [s^{-1} \cdot cm^{-3}], \quad (3)$$

рассчитанные с использованием плотности $n_e = 10^9 \text{ cm}^{-3}$ и температуры $T_e = 9 \text{ eV}$ электронов, измеренных работе [7]. В (3) N_H — концентрация атомов водорода, n_e — концентрация электронов, v_e — скорости электронов, $\sigma_{e,H\alpha}$ — сечение возбуждения линии $H\alpha$ прямым электронным ударом. Ожидаемые светимости примерно на три порядка меньше наблюдаемых нами в модельной установке. Это, однако, вполне доступная область измерений. Световая эффективность использованной нами оптики и детектора составляет 10^{-9} [7], при этом реализуется чувствительность по потокам Q более высокая, чем требуемая в проекте ИТЭР. В оценках нами принято также, что оптическая система ИТЭР, формирующая изображение внутренней части стенки, имеет пространственное разрешение 1 cm^3 . Более реальным является разрешение $\sim 1000 \text{ cm}^3$ (11) [3], время вылета частиц из этого объема $\tau \sim 10^{-4} \text{ s}$, их число $N_{H_2O}^0(11) \sim 3 \cdot 10^9 \text{ l}^{-1}$, и $N_{H\alpha}^{ph}$ также будет на порядок выше приведенных на рисунке значений, что дополнительно облегчит детектирование примесей.

Применительно к поиску течей непосредственно в ИТЭР, на который масштабируются приведенные выше результаты, следует сделать замечание.

Предлагаемый метод преимущественно ориентирован на работу реактора в режиме „чистящего“ разряда в гелии. В гелий могут быть добавлены необходимые инертные актинометры в следовых количествах для измерения концентраций примесных атомов водорода, обусловленных появлением молекул воды. Другой возможный способ определения концентраций H использует атомы дейтерия D в качестве „промежуточного“ актинометра [6], если в исходный газ добавляется D_2 . И в том, и в другом случае измерения по линиям $H\alpha$ и $D\alpha$ удобны в условиях ИТЭР и в техническом плане. Это связано с особенностями системы спектральных измерений Viz/IR, разрабатываемой специально для проекта ИТЭР, поскольку на область 650 nm приходится максимальная спектральная чувствительность данной системы.

Если в предшествующих операциях с разрядом в плазмообразующем газе содержался водород (или пары воды), то следует учитывать, что в спектрах излучения последующих разрядов даже в отсутствие добавок или течей воды может появляться линия $H\alpha$, связанная с десорбцией водорода и воды со стенок. Наши эксперименты с полым катодом из вольфрама (этот же материал планируется для стенки ИТЭР) показали, что, если после очистки разрядом в инертном газе произвести откачку до остаточного давления $\sim 3 \cdot 10^{-5}$ mbar, линия $H\alpha$ продолжает проявляться. Для устранения этого артефакта остаточное давление откачки должно быть не более 10^{-6} mbar. Проектная вакуумная система ИТЭР это условие обеспечивает.

Работа выполнена за счет средств гранта Российского научного фонда (проект № 14-22-00273).

Список литературы

- [1] *Durocher Au., Bruno A., Chantant M., Gargiulo L., Gherman T., Hatchressian J.-C., Houry M., Le R., Mouyon D.* // Fusion Eng. Design. 2013. V. 88. N 6-8. P. 1390–1394.
- [2] *Kurnaev V., Afonin O., Antipenkov A., Koborov N., Mukhammedzyanov T., Ochkin V., Pearce R., Pleshkov E., Podolyako F., Sorokin I., Urusov V., Vizgalov I., Voronov G., Vukolov K., Worh L., L-2M team* // Fusion Eng. Design. 2013. V. 88. N 6-8. P. 1414–1417.
- [3] ITER. Final Design Report. 2001. G31 DDD 14 01_07-19 W0.1. Section 3.1 Vacuum pumping and fuelling systems.
- [4] *Бернацкий А.В., Очкин В.Н., Бафоев Р.Н.* // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2016. Т. 43. № 6. С. 18–23.
- [5] *Bernatskiy A.V., Ochkin V.N., Kochetov I.V.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2016. V. 49. N 39. P. 395204 (1–10).
- [6] *Bernatskiy A.V., Ochkin V.N.* // Plasma Sources Sci. Technol. 2017. V. 26. N 1. P. 015002 (1–5).
- [7] *Бернацкий А.В., Очкин В.Н., Афонин О.Н., Антипенков А.Б.* // Физика плазмы. 2015. Т. 41. № 9. С. 767–777.
- [8] *Ionin A.A., Kochetov I.V., Napartovich A.P., Yuryshchev N.N.* // J. Phys. D: Appl. Phys. 2007. V. 40. N 2. P. R25–R61.
- [9] *Deminsky M., Chorkov V., Belov G., Cheshigin I., Knizhnik A., Shulakova E., Shulakov M., Iskandarova I., Alexandrov V., Petrusev A., Kirillov I., Strelkova M., Umanski S., Potapkin B.* // Comput. Mater. Sci. 2003. V. 28. N 2. P. 169–178.