УДК 533.9.07

ВЛИЯНИЕ ПАРОВ ВОДЫ НА ИОННЫЙ СОСТАВ ВОДОРОДНОЙ ПЛАЗМЫ ПУЧКОВО-ПЛАЗМЕННОГО РАЗРЯДА

И. А. Сорокин, И. В. Визгалов, К. М. Гуторов, Ф. С. Подоляко

Описывается эффект оптимизации ионного состава водородной плазмы пучково-плазменного разряда (ППР) по протонной компоненте при напуске паров воды в вакуумную камеру установки. Эксперименты по изучению влияния контролируемого напуска паров воды на свойства сильнонеравновесной плазмы показали, что при определенных условиях происходит перераспределение ионного состава разряда в сторону увеличения доли атомарных ионов. Предполагается, что данный эффект вызван взаимодействием паров воды со стенкой вакуумной камеры плазменной установки, что приводит к окислению поверхности и уменьшению коэффициента рекомбинации. Также присутствие активного радикала ОН приводит к смещению химического равновесия в сторону увеличения доли атомарных ионов.

Ключевые слова: масс-спектроскопия, ионный состав, пучково-плазменный разряд, протонная компонента, пары воды.

Увеличение доли атомарных ионов водородной плазмы газоразрядных источников является серьезной проблемой, в особенности когда речь идет о маломощных источниках, где невозможно произвести коррекцию ионного состава с помощью форсирования мощности разряда, например, в газонаполненных нейтронных трубках и имплантерах водорода. Также увеличение мощности приводит к увеличению эрозии электродов, что снижает энергоэффективность и ресурс работы плазменного источника.

Более эффективными методами оптимизации ионного состава плазмы в данном случае являются те, что изменяют химическую кинетику непосредственно внутри плазмен-

Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Россия, Москва, Каширское шоссе, 31; e-mail: iasorokin@mail.ru.

ного образования. Влияние различных параметров на ионный состав плазмы изучалось в ряде работ, например, [1–7]. В данной работе предлагается метод увеличения доли атомарных ионов водородной плазмы при контролируемом напуске паров воды в камеру установки. Предполагается, что эффект достигается как за счет изменения характера плазменно-поверхностного взаимодействия плазменного шнура со стенкой вакуумной камеры, так и за счет смещения химического равновесия в разряде.

Описание установки. Исследования проводились на открытой адиабатической ловушке типа "пробкотрон" с пробочным отношением 1.55. Величина магнитного поля в пробке составляет до 0.1 Тл. На установке реализуется ППР, инициируемый мощной электронной пушкой. Схема установки представлена на рис. 1. В работе измерения проводились при мощности разряда 200 Вт. Параметры плазмы в таком режиме: плотность $-5.2 \cdot 10^{11} \, \text{см}^{-3}$, электронная температура $-5 \, \text{эВ}$. Рабочее давление в основной камере установки поддерживалось на уровне $3 \cdot 10^{-4} \, \text{Торр}$.

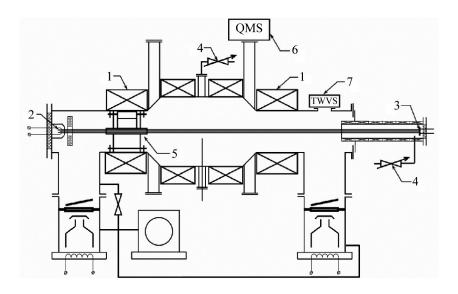


Рис. 1: Схема установки ΠP -2: $1-\kappa$ атушки магнитного поля, 2- электронная пушка, $3-\kappa$ оллектор электронного пучка, 4- система газонапуска, 5- статический масс-анализатор, $6-\kappa$ вадрупольный масс-спектрометр, $7-\kappa$ алиброванный термохимический источник паров воды.

Для анализа ионного состава предусмотрен масс-анализатор с 180° фокусировкой, использующий собственное магнитное поле установки [8–10]. Ионы вытягиваются непосредственно из плазменного шнура. Развертка массового спектра осуществляется изменением ускоряющего потенциала, приложенного между входной щелью и сегментом

анализатора. Схема прибора показана на рис. 2. Анализатор устанавливается в магнитную пробку установки для лучшего разрешения.

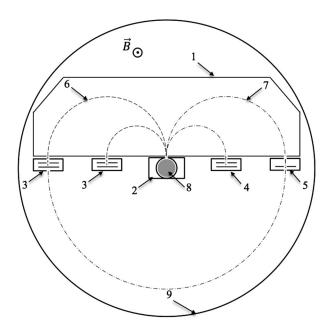


Рис. 2: Схема анализатора: 1 – сегмент анализатора, 2 – входная щель, 3 – коллекторы для отрицательных ионов, 4 – коллектор для положительных ионов массой до 10 а.е.м., 5 – коллектор для ионов свыше 10 а.е.м., 6 – траектории отрицательных ионов, 7 – траектории положительных ионов, 8 – плазменный шнур, 9 – стенка вакуумной камеры.

В качестве источника паров воды использовался калиброванный термохимический источник (ТИПВ), разработанный специально для отработки методов ранней диагностики течи системы охлаждения ТЯУ [11, 12]. Источник отличается тонкой регулировкой потока паров воды в камеру установки в пределах от 10^{12} до 10^{22} молекул/с.

Результаты экспериментов. Эксперименты были проведены при постоянном потоке водорода (10^{19} молекул/сек) и линейном увеличении потока паров воды в течение часа, начиная от нижнего предела источника (10^{12} молекул/сек) до $3 \cdot 10^{17}$ молекул/сек. Верхний предел потока паров воды связан с достижением оптимального соотношения между ионными компонентами плазмы. Доля паров воды в течение экспериментов не превышала 3% (мол.). Динамика ионного состава водородной плазмы ППР при напуске паров воды представлена на рис. 3.

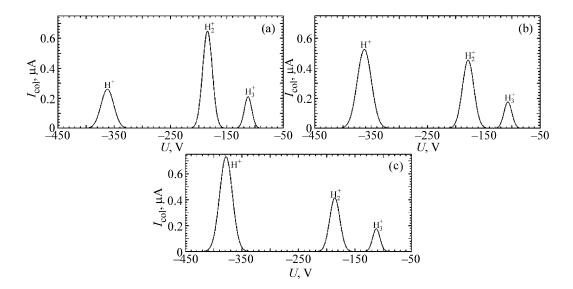


Рис. 3: Ионный состав водородной плазмы ППР: (а) без добавления паров воды; (b) 30 минут после включения ТИПВ; (c) 60 минут после включения ТИПВ.

После включения ТИПВ добавление паров воды длительное время не сказывалось на ионном спектре ППР, причем как изменение потока паров, так и варьирование потока рабочего газа не влияло на общую картину. Спустя примерно 30 минут происходит уменьшение молекулярной компоненты в пользу атомарной при прочих равных условиях. По достижении равновесия соотношения между пиками стали слабо зависеть от регулировки потока паров воды, а при отключении ТИПВ долгое время не изменялись, что указывает на "эффект памяти" стенки вакуумной камеры. Изменение ионного состава водородной плазмы ППР в течение эксперимента представлено на рис. 4.

Вклад ионов примесей в общий ионный поток в течение эксперимента оставался на незначительном уровне по сравнению с основными компонентами (H⁺, H₂⁺ и H₃⁺) и практически не возрастал при добавлении паров воды. Небольшое смещение пиков ионного спектра на рис. З обусловлено изменением магнитного поля в течение эксперимента из-за нагрева катушек магнитного поля.

Обсуждение экспериментпльных результатов. Предполагается, что наблюдаемый эффект связан с несколькими факторами. Появление химически активных радикалов ОН⁻ при диссоциации паров воды способствует изменению кинетики химических процессов в плазменном шнуре, а появление оксидных пленок на поверхности вакуумной камеры — увеличению концентрации атомарного водорода за счет уменьшения коэффициента рекомбинации атомов водорода на поверхности вакуумной камеры. Также

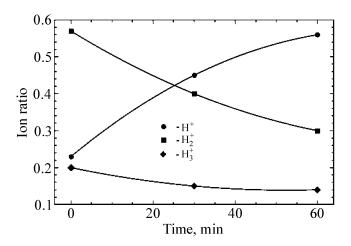


Рис. 4: Динамика относительных потоков ионных компонент водородной плазмы ППР от времени после включения ТИПВ.

физически сорбированная на стенках камеры вода позволяет длительное время работать без постоянного поступления паров воды извне.

Однократный процесс соударения электрона с молекулой водорода может привести не только к образованию молекулярного иона, но и к образованию протона [13]:

$$H_2 + e = H_2^+ + 2e - 15.4 \,\text{eV},$$

$$H_2 + e = H^+ + H + 2e - 18 \,\text{eV}.$$

Однако поперечное сечение для второго процесса значительно меньше [14], чем для первого (примерное соотношение между ними 1:200). Таким образом, однократное соударение электрона с молекулой не может быть эффективным средством образования протонов. В отсутствие паров воды образование протонов в водородной плазме ППР происходит за счет многократных процессов, представляющих собой соударения электронов с тяжелыми частицами. Основными такими процессами являются:

1. Диссоциация молекулы с последующей ионизацией атомов, равновесная концентрация которых устанавливается в камере ионного источника:

$$H_2 + e = H + H + e - 4.7 \,\text{eV};$$

$$H + e = H^+ + 2e - 13.6 \,\text{eV}.$$

2. Ионизация молекулы с последующей диссоциацией молекулярного иона:

$$H_2 + e = H_2^+ + 2e - 15.4 \,\text{eV};$$

$$H_2^+ + e = H^+ + H + e - 2.6 \,\text{eV};$$

 $H_2^+ + e = H^+ + H^+ + 2e - 16.2 \,\text{eV}.$

3. Диссоциативная рекомбинация:

$$H_2 + e = H_2^+ + 2e - 15.4 \,\text{eV};$$

 $H_2^+ + e = H + H + 11.0 \,\text{eV};$
 $H_2^+ + e = H_2^+ + 2e - 13.6 \,\text{eV}.$

Процессы 2 и 3 в дальнейшем не учитываются из-за высокого порога первой ступени цепочки химических реакций. Также в случае 3 образованные во второй ступени два атома водорода, имеющие в среднем по 5.5 эВ кинетической энергии, быстро покидают область плазменного шнура и внедряются в поверхность вакуумной камеры.

Основным источником атомов является объемная диссоциация молекул. Можно представить число актов диссоциации молекул водорода, происходящих в $1~{\rm cm}^3$ объема плазмы за $1~{\rm cek}$, в виде:

$$v_{\rm diss} = n_{\rm mol} n_e \int_{v_0}^{\infty} \sigma_{
m dissH_2} f(v) dv = n_{\rm mol} n_e \langle v_e \sigma_{
m dissH_2} \rangle,$$

где f(v) – функция распределения электронов по скоростям; $\sigma_{\rm dissH_2}$ – поперечное сечение диссоциации молекул водорода электронным ударом; $\langle v_e \sigma_{\rm dissH_2} \rangle$ – краткое обозначение интеграла.

Пренебрегая объемной рекомбинацией атомов, считаем, что они уходят в радиальном направлении и рекомбинируют на стенке камеры с вероятностью r. Соответственно, с вероятностью (1-r) они возвращаются в объем. Приравнивая количество атомов, образующихся во всем объеме, к рекомбинирующим на поверхности камеры:

$$\frac{dN_a}{dt} = 2n_{\text{mol}}n_e \langle v_e \sigma_{\text{dissH}_2} \rangle V = 2n_{\text{mol}}n_e \langle v_e \sigma_{\text{dissH}_2} \rangle \pi R^2 L;$$
$$\frac{dN_{\text{rek}}}{dt} = \frac{1}{4}n_a \overline{v_a} rS = \frac{1}{4}n_a \overline{v_a} r2\pi RL;$$

можно получить отношение концентраций атомов и молекул, устанавливающееся в плазме по достижении состояния динамического равновесия:

$$\frac{n_a}{n_{\text{mol}}} = \frac{4Rn_e}{\overline{v_a}r} \langle v_e \sigma_{\text{dissH}_2} \rangle, \tag{1}$$

где R и L – радиус плазменного шнура и длина вакуумной камеры ПР-2; r – коэффициент рекомбинации, представляющий собой отношение числа ударов атомов о стенку, при которых атомы покидают стенку в составе молекулы, к общему числу ударов за тот же промежуток времени. Увеличение отношения концентраций в (1) при неизменных размерах разрядной камеры может быть достигнуто за счет увеличения n_e и T_e при увеличении удельной мощности разряда, то есть мощности, вкладываемой в единицу объема плазмы.

Работа на чистом водороде приводит к восстановлению окислов и уменьшению фоновой концентрации паров воды. При добавлении паров воды в вакуумную камеру установки происходит ряд процессов, которые, предположительно, лежат в основе наблюдаемого эффекта. Стенка вакуумной камеры окисляется, что приводит к изменению коэффициента рекомбинации из-за образовавшейся на ее поверхности диэлектрической оксидной пленки $(r/r_0 \sim 0.01, \text{ где } r_0$ — коэффициент рекомбинации на чистой поверхности стенки) и увеличению концентрации атомов в соответствии с (1). Увеличение концентрации атомарного водорода в вакуумной камере в свою очередь приведет к увеличению количества атомарных ионов в ионном спектре плазмы. Взаимодействие паров воды со стенкой объясняет и временную задержку перед тем, как происходит перераспределение пиков ионного спектра. Характерное время задержки соответствует времени окисления и насыщения стенки вакуумной камеры парами воды.

Также свойства плазмы при напуске многоатомных газов усложняются процессами распада молекул, приводящими к сильной зависимости стационарного химического состава плазмы от внешних параметров [15]. При диссоциации воды в плазме образуется высокореакционный гидроксил ОН [16]. Наличие большого количества ионов молекулярного водорода и небольшой примеси такого радикала дает возможность предположить наличие каталитического процесса, который приводит к разрушению части молекулярных ионов водорода H_2^+ в пользу H^+ :

$$H_2O + e = OH + H - 5.6 \,\text{eV} \rightarrow H_2^+ + OH = H_2O + H^+ + 3.0 \,\text{eV}.$$

Для осуществления и поддержания подобного процесса необходима небольшая добавка паров воды, поскольку регенерация воды происходит автоматически. Также из-за большого коэффициента прилипания воды к стенке следует ожидать, что после отключения источника паров воды данный процесс будет продолжаться долгое время до тех пор, пока стенка камеры не станет «сухой», что подтверждается экспериментально.

Выводы. Описан метод оптимизации ионного состава маломощного разряда по атомарной компоненте без форсирования вкладываемой мощности. Предполагается, что эффект увеличения протонной компоненты связан с взаимодействием паров воды со стенкой вакуумной камеры плазменной установки, что приводит к окислению поверхности и увеличению коэффициента рекомбинации. Также происходит смещение химического равновесия внутри плазменного шнура за счет присутствия радикала ОН. Подобная методика является актуальной для маломощных источников, где невозможно произвести коррекцию ионного состава с помощью форсирования мощности разряда, например, в газонаполненных нейтронных трубках, имплантерах водорода и так далее.

Работа выполнена по контракту с Физическим институтом им. П. Н. Лебедева Российской академии наук за счет средств гранта РНФ № 14-12-00784.

ЛИТЕРАТУРА

- [1] H. Sugai, H. Kojima, and T. Okuda, Phys. Lett. **92A**(8), 392 (1982).
- [2] H. Sugai et al., JNM **128&129**, 169 (1984).
- [3] U. Fantz et al., Rev. Sci. Instrum. 77, 03A516 (2006).
- [4] O. Masataka et al., J. Plasma Fusion Res. 7, 50 (2006).
- [5] R. Bogdanowicz, Acta Phys. Pol. A 114, A-33 (2008).
- [6] M. Capitelli, R. Celiberto, et al., Plasma Phys. Control. Fusion 53, 1 (2011).
- [7] T. Iijima et al., JPS Conf. Proc. 1, 015023 (2014).
- [8] H. Kojima et al., JNM **128&129**, 965 (1984).
- [9] I. V. Vizgalov et al., Instrum. Exp. Techniques 42, 718 (1999).
- [10] O. Waldmann et al., 34^{th} EPS Conf. on Plasma Phys. Warsaw; Europhys. Conf. Abstr. **31F**, 5.108 (2007).
- [11] G. S. Voronov et al., Plasma Physics Reports **39**(4), 277 (2013).
- [12] V. A. Kurnaev et al., Fusion Engineering and Design 88(6-8), 1414 (2013).
- [13] М. Д. Габович, Физика и техника плазменных источников ионов (М., Атомиздат, 1971).
- [14] H. F. Newhall, Phys. Rev. 11, 62 (1942).
- [15] А. М. Кутепов и др., Вакуумно-плазменное и плазменно-растворное модифицирование полимерных материалов (М., Наука, 2004).
- [16] В. Д. Русанов и др., УФН **134**, 185 (1981).

Поступила в редакцию 14 июля 2015 г.

Печатается по представлению отдела НТП ФИАН.