

Федеральное государственное бюджетное учреждение науки
Физический институт им. П.Н. Лебедева Российской академии наук

На правах рукописи

Бернацкий Антон Владиславович

**Спектроскопические методы детектирования примесей молекул
воды и их производных в плазме инертных газов
электровакуумных установок**

Специальность 01.04.05 – Оптика

Автореферат
диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Москва 2017

Работа выполнена в Отделе низкотемпературной плазмы Отделения оптики Федерального государственного бюджетного учреждения науки Физического института им. П.Н. Лебедева Российской академии наук (ФИАН).

Научный руководитель:

доктор физико-математических наук, профессор Очкин Владимир Николаевич, ФИАН, главный научный сотрудник.

Официальные оппоненты:

доктор физико-математических наук Лебедев Юрий Анатольевич, Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Ордена Трудового Красного Знамени Институт нефтехимического синтеза им. А.В. Топчиева Российской академии наук;

доктор физико-математических наук Трушкин Николай Иванович, акционерное общество "Государственный научный центр Российской Федерации Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований".

Ведущая организация:

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования "Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ".

Защита диссертации состоится 09 октября 2017 года в 12 часов 00 минут на заседании диссертационного совета Д 002.023.03 при Федеральном государственном бюджетном учреждении науки Физическом институте им. П.Н. Лебедева Российской академии наук по адресу: 119991, Москва, Ленинский проспект, 53.

С диссертацией можно ознакомиться в библиотеке ФИАН и на сайте www.lebedev.ru.

Автореферат разослан «___» _____ 2017 года

Ученый секретарь

диссертационного совета Д 002.023.03

доктор физико-математических наук

А.С. Золотько

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

Актуальность темы

Газовые разряды в инертных газах служат активным веществом различных объектов для широких применений. Среди них – газовые лазеры на переходах атомов, ионов, молекул, в т.ч. эксимерные, лампы высокой яркости, дуговые плазмотроны и источники с индуктивно связанной плазмой для химического анализа и др. Параметры объектов сильно зависят от чистоты плазмообразующих газов и/или контролируемости количеств добавок к ним иных частиц. Многие из них функционируют при высоком вкладе электрической мощности и, из-за ее частичного рассеяния, требуют охлаждения разрядных камер, как правило, проточной водой, что ставит вопрос о контролируемой вакуумной изоляции камер от охладителя. Этот вопрос в последние годы становится все более актуальным в связи с расширением экспериментов с мощными установками при магнитном удержании плазмы с технически сложными первыми стенками плазменных камер (токамаки, стеллараторы) и строительством еще более крупных реакторов.

Технический проект 2001 года Международного экспериментального термоядерного реактора ИТЭР (ITER – International Thermonuclear Experimental Reactor) [1] устанавливает весьма жесткое ограничение на минимальное поступление паров воды, охлаждающих первую стенку камеры (объемом около 1000 м^3), величиной $10^{-7} \text{ Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}$ (10^{-7} Вт) по потоку натекания и его мощности. Оно продиктовано, в первую очередь, опытом работы магнитных ловушек предыдущих поколений, таких как JET в Великобритании, Tore Supra во Франции, токамаков серии Т и стелларатора Л-2М в России. Практика работы с ними показала, что возникновение течей не редкое, к сожалению, событие, ограничивающее возможности исследований и развития.

При всей остроте проблемы, вопрос о методах контроля потоков примесей на таком уровне оставался, фактически, открытым. Для современных вакуумных, космических, газотранспортных и иных технологий разработано

большое число методов изучения состава газов высокой чувствительности (масс-спектрометрия, хроматография, электронный захват, вакуумные датчики и др.) в т.ч. паров воды. Однако, они практически непригодны для оперативного контроля образования примесей в плазменных устройствах, т.к. требуют использования аппаратуры внутри камеры реактора. И, несмотря на то, что отдельными группами ведется разработка систем для размещения диагностик внутри камеры (например, разработка "робота-руки" на Tore Supra [2]), их использование возможно только во время монтажа или технологических перерывов для профилактики, или ремонта реактора.

Результаты теоретического анализа, выполненного в ряде групп в начале 2000-х годов [3], указывали, что, хотя применение к этой проблеме различных методов не может быть исключено, в условиях ограниченной доступности к газоразрядной камере наиболее реалистичными могли бы стать спектроскопические методы анализа собственного оптического излучения плазмы при условии обеспечения необходимой чувствительности. Это требовало соответствующих исследований. После 2002 года и до настоящего времени были опубликованы [4-6] и продолжают появляться предложения о конкретных методиках и данные о результатах оптико-спектральных модельных экспериментов. С относительно медленным прогрессом была достигнута чувствительность 10^{-5} Па·м³·с⁻¹ [7] и требовались улучшения. Работы в этом направлении с участием автора диссертации были начаты в 2011 году.

Цели и задачи работы

Основной целью была определена разработка высокочувствительных спектральных эмиссионных методов измерений концентраций малых атомно-молекулярных составляющих плазмы и их потоков в экспериментах, реализующих условия, близкие к условиям в пристеночных областях термоядерного реактора при наличии молекул воды. Методы должны быть количественными и применимыми в отсутствие термодинамического равновесия.

Были поставлены и решены следующие конкретные задачи:

1. Создание многофункциональной экспериментальной установки для исследования плазмы при малых давлениях плазмообразующего газа контролируемого состава. Обеспечение измерений абсолютных и относительных интенсивностей атомных и молекулярных спектров частиц, зондовые измерения, вариации температурного режима стенок камеры.

2. Разработка физически обоснованного метода абсолютных измерений концентраций молекул воды по спектрам характерного фрагмента распада – радикалов гидроксила.

3. Расширение возможностей методов оптической актинометрии для измерений малых газовых составляющих в химически многокомпонентной плазме.

4. Определение реального химического состава плазмы и разработка модели для его интерпретации и масштабирования результатов.

5. Обеспечение чувствительности к потокам натекания молекул воды в плазменную камеру не менее требуемой в проекте ИТЭР.

Научная новизна

1. Предложен, физически обоснован и реализован метод измерений абсолютных концентраций молекул водяного пара в неравновесной плазме с помощью комбинации абсолютных оптических и зондовых измерений без химической калибровки состава плазмообразующего газа. Используется особенность во вращательной структуре электронных полос ОН. Она связана с излучением "горячих" радикалов гидроксила с быстрым вращением, образующихся при диссоциативном возбуждении H_2O . Достигнута чувствительность, превышающая ранее известную.

2. Расширены возможности оптической актинометрии за счет использования нескольких основных и промежуточных актинометров (мультиспектральная актинометрия). Это позволяет расширить перечень

исследуемых частиц, производить учет тушения излучающих состояний в плазме заранее неизвестного химического состава.

3. Проведены исследования реального многокомпонентного состава плазмы в различных условиях плазмы пониженного давления. Результаты количественно описываются разработанной моделью плазмохимических процессов в объеме и на поверхности разрядной камеры.

4. Установлено, что наличие в объеме газа локального плазменного источника существенно меняет динамику поведения плотности паров воды из-за появления новых активных частиц в процессах быстрого, по сравнению с классической физической адсорбцией, плазмохимического разложения исходных молекул.

5. Показано, что молекулы воды, проникающие в плазму, испытывают глубокую диссоциацию. Как в полой катоде, так и в положительном столбе тлеющего разряда степень диссоциации составляет 96-98% в исследованном диапазоне плотностей разрядных токов (1-30 мА/см²). Вода преобразуется преимущественно в молекулы водорода и кислорода, концентрации атомов, радикалов и многоатомных молекул на несколько порядков ниже.

Практическая и научная значимость

1. Развита методика определения малых концентраций молекул воды и фрагментов ее распада в неравновесной плазме влажных инертных газов по эмиссионным оптическим спектрам атомных и молекулярных электронных переходов. Они могут использоваться для контроля работы плазменных установок различного назначения. Результаты их применения подтверждены независимыми измерениями по поглощению лазерного излучения.

2. Расширены возможности методов оптической актинометрии многокомпонентной неравновесной плазмы. В сочетании с измерениями интенсивностей во вращательной структуре спектра гидроксидов это дало возможность исключить зондовые измерения из диагностики, сделав технику

бесконтактной и дистанционной. В важном частном случае диагностики термоядерного реактора при наличии дейтерия, спектральные линии $\text{H}\alpha$ и $\text{D}\alpha$ составляют близкую к идеальной актинометрическую пару для измерений концентраций молекул воды и ее фрагментов.

3. Чувствительность разработанных методов в отношении потоков паров воды, поступающих в плазму, удовлетворяет наиболее высоким на сегодня проектным требованиям к герметичности плазменных камер нового поколения термоядерных реакторов, т.е. лучше 10^{-7} Па·м³·с⁻¹. Инженерная реализация методов перспективна для включения в состав диагностических комплексов реакторов.

Защищаемые положения

1. Наличие двух вращательных температур в электронно-колебательных состояниях радикалов $\text{OH}(A^2\Sigma)$ позволяет проводить измерения концентраций молекул воды в неравновесной плазме.

2. Соотношения интенсивностей во вращательной структуре спектра радикалов OH и отдельных линий актинометров однозначно определяют концентрации молекул воды независимо от параметров электронной компоненты плазмы.

3. Итерационный анализ интенсивностей в спектрах искомым и пробных частиц в предложенном методе мультиспектральной актинометрии совместно учитывает процессы тушения излучающих состояний и химические превращения исходного плазмообразующего газа.

4. Достигнута чувствительность к определению концентраций молекул воды $2 \cdot 10^{12}$ см⁻³, что позволяет обнаруживать потоки молекул воды в вакуумную камеру на уровне $5 \cdot 10^{-8}$ Па·м³·с⁻¹.

Достоверность результатов обеспечивается применением современного оборудования и методов измерений, воспроизводимостью экспериментальных результатов, полученных в разных установках. Результаты находятся в соответствии с теоретической моделью, не противоречат ранее известным литературным данным, неоднократно апробированы на международных и российских конференциях, научных семинарах.

Апробация работы

Основные результаты диссертации докладывались автором на конференциях: VII International Conference "Plasma Physics and Plasma Technology" PPPT-7 (Belarus, Minsk; 17-21 September 2012); XIX научно-техническая конференция "Вакуумная наука и техника" (Украина, Судак; 16-23 сентября 2012); V Всероссийская молодёжная конференция по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики (Россия, Москва; 10-15 ноября 2013); Summer School on the Physics of Plasma-Surface Interactions (Russia, Moscow; 28 July – 4 August 2014); III Международная научно-практическая конференция "Инновации в науке, производстве и образовании" ИНПО-2014 (Россия, Рязань; 13-14 октября 2014); VIII International Conference "Plasma Physics and Plasma Technology" PPPT-8 (Belarus, Minsk; 14-18 September 2015); VI Всероссийская молодёжная конференция по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики (Россия, Москва; 15-20 ноября 2015); II международная конференция "Плазменные, лазерные исследования и технологии" (Россия, Москва; 25-27 января 2016); XXIV Международная Конференция "Лазерно-информационные технологии в медицине, биологии, геоэкологии и транспорте – 2016" (Россия, Новороссийск; 12-17 сентября 2016); XXV Съезд по спектроскопии (Россия, Москва, Троицк; 3-7 октября 2016); 10-я конференция "Современные средства диагностики плазмы и их применение" МДРА 2016 (Россия, Москва; 14-16 ноября 2016).

Материалы диссертации неоднократно докладывались и обсуждались на семинарах Отдела оптики низкотемпературной плазмы ФИАН, научных

семинарах кафедры "Физика плазмы" НИЯУ МИФИ, семинаре "Получение, исследование и применение низкотемпературной плазмы" ИНХС РАН, семинаре кафедры "Оптики, спектроскопии и физики наносистем" физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова, семинаре секции научного совета №6 "Расчетно-теоретические и экспериментальные исследования физических процессов в плазме и твердых телах" АО "ГНЦ РФ ТРИНИТИ".

Публикации

По теме диссертации опубликованы 25 печатных работ, включая 9 научных статей в рецензируемых журналах, 8 из которых индексируются в базах Web of Science и Scopus, 14 публикаций в материалах конференций, 1 препринт и 1 монографию. Список публикаций приводится в конце автореферата.

Личный вклад автора

Все представленные в диссертационной работе оригинальные результаты получены автором лично или при его прямом участии. Автор принимал решающее участие в создании всех описанных экспериментальных установок, измерениях, им предложены и реализованы методы обработки данных.

Все результаты исследовательской работы, представленной в диссертации, получены в Отделе низкотемпературной плазмы ФИАН. Работа выполнялась в рамках планов ФИАН и поддерживалась грантами: Президента РФ (грант № МК-2352.2012.2), Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 10-08-00886-а), Российского научного фонда (грант № 14-12-00784).

Структура и объём диссертации

Работа состоит из Введения, 8 глав и Заключения. Общий объём 118 страниц, включающих 51 рисунок, 20 таблиц и списка литературы из 115 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во **Введении** обоснована актуальность диссертации, сформулированы цели работы, дан анализ научной новизны полученных результатов и их практической значимости, сформулированы положения, выносимые на защиту. Описана структура диссертации, приведены сведения об апробации работы и список публикаций по теме диссертации.

В **Главе 1 "Состояние проблемы, постановка задачи"** описываются особенности требований, предъявляемых к условиям работы энергоемких электроразрядных устройств на основе плазмообразующих инертных газов, охлаждаемых водой и возникающей при этом необходимости предотвращения и контроля проникновения молекул воды в плазменную камеру. С появлением все более мощных и конструктивно усложняющихся электроэнергетических установок эти проблемы обостряются. Рассматриваются ограничения на допустимые потоки примесей, выдвигаемые, в частности, проектом строящегося термоядерного реактора ИТЭР. В последние годы методы контроля разрабатываются и тестируются.

За исключением иных отдельных методов (абсорбционная лазерная спектроскопия в комбинации с масс-спектрометрией, наблюдения автоколебательных режимов плазменно-пучкового разряда и др.), внимание привлекли методы эмиссионной спектроскопии. В большинстве случаев полученные чувствительности по потокам натекания паров воды в плазму оказались сопоставимыми на уровне 10^{-3} - 10^{-5} Па·м³·с⁻¹, т.е. несколько хуже, чем предполагается проектом ИТЭР (10^{-7} Па·м³·с⁻¹).

В заключительной части главы формулируются задачи настоящей работы, в центре которых поиск и физическое обоснование новых спектральных методов адекватных проблеме, разработка необходимых экспериментальных средств, их применение и теоретическая интерпретация результатов.

В **Главе 2 "Экспериментальная установка "Течь" [А-1,4,6; Б-1,2,5; В-1,2,3]** описывается экспериментальное оборудование и его параметры. Используется электроразрядная вакуумная камера объемом 22 литра из

нержавеющей стали. Возможен прогрев стенок до 450 К. Разрядный узел – катод прямоугольной формы, близкой к рельефуblankета первой стенки токамака в местах стыков (наиболее уязвимых мест для течей охладителя). В установку включены газотранспортная и вакуумная системы, электрические и оптические выводы, спектроскопическое оборудование с возможностью измерений абсолютных интенсивностей излучения плазмы, схема зондовых измерений. Основные рабочие характеристики установки приведены в таблице 1.

Таблица 1. Основные характеристики и режимы работы установки.

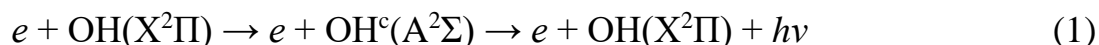
Параметр	Величина	Средство достижения
Время установления разряда после пробоя	30-50 с	Поддержание тока
Напряжение поддержания разряда	0-600 В	Универсальный блок УИП-1
Ток разряда	0.1-0.5 А	УИП-1, резистор 2.6 кОм
Парциальные давления (He, H ₂ O, Ar, Xe, D ₂)	0.001-1 мбар	Система напуска
Остаточное давление	10 ⁻⁶ мбар	Вакуумный пост TDS-022
Время записи спектра гидроксила (306-320нм)	30 с	Монохроматор МДР-204
Время регистрации интенсивности одиночной линии	1-10 с	Система регистрации, статистическое накопление
Время обработки ВАХ	1-10 с	Система регистрации, статистика измерений по 3-10 сериям из 256 массивов
Время установления температуры стенок камеры (300-450 К)	2-3 ч	Ленточная обмотка электрического нагревателя

Глава 3 "Относительные и абсолютные интенсивности в спектрах разряда в плазме с добавками паров воды в области 300-900 нм" [А-1; Б-5,7,8; В-3] посвящена подробному анализу атомных и молекулярных спектров

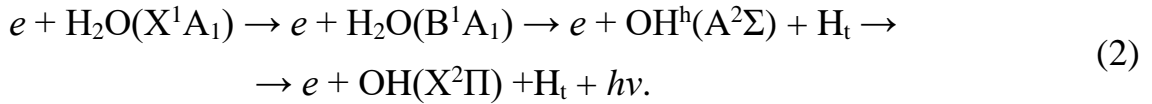
плазмы на основе инертных газов с добавками паров воды. Проведена идентификация линий и полос переходов OH, H₂, O₂, N₂, N₂⁺, O, H, N, He, Xe, Ar, W, Fe, Cu. На фоне развитых спектров этих частиц полосы Китагава H₂O в области 560-695 нм не наблюдаются. Выделены группы линий, которые могут быть использованы в диагностике. Для более чем 50 из этих линий, практически во всей рассматриваемой спектральной области, проведены абсолютные измерения плотности излучаемых ими фотонов в единицу телесного угла в диапазоне $N^{ph}/4\pi=(10^{10}-10^{14}) \text{ см}^{-3}\cdot\text{с}^{-1}\cdot\text{ср}^{-1}$.

Результаты абсолютных измерений позволяют объективно оценивать выбор интервала спектра, приемлемого с точки зрения разрешения и чувствительности спектральной аппаратуры. Основная проблема состоит в установлении взаимосвязей интенсивностей линий различных частиц неравновесной плазмы с их концентрациями, включая и концентрации молекул воды, не проявляющих себя в спектрах эмиссии непосредственно. Анализ собственных и предшествующих результатов показывает, что эта комплексная проблема связана с рядом этапов. В качестве первого предлагается рассмотреть уже ранее изучавшийся подход к измерениям концентраций H₂O по спектру гидроксила, что может дать основу для сопоставлений с другими подходами и результатами предшествующих измерений. Ставится принципиально новая задача уйти от считавшихся необходимыми калибровок по газовым смесям заранее известной влажности.

В Главе 4 "Определение концентраций молекул воды в плазме при комбинации абсолютных оптических и зондовых измерений" [А-1; Б-1,2,3,4,5; В-1,3] описывается новый подход к измерению влажности плазмы. Он использует особенности известного [8] процесса возбуждения гидроксила электронами, который протекает по двум каналам – прямое возбуждение:



и диссоциативное возбуждение воды:



В первом процессе (1) вращательные уровни излучающего состояния заселяются в соответствии с распределением Больцмана при температуре газа T_c ("холодные" молекулы), во втором (2) также формируется больцмановский ансамбль, но с более высокой T_{hot} вращательной температурой ("горячие" молекулы). На рис. 1 показаны фрагмент спектра $\text{OH}(A-X)$ и логарифмическая зависимость интенсивностей линий от энергии вращательного терма $F(K)$ (вставка). Если использовать интенсивности I^h только "горячей" группы, то концентрация молекул H_2O может быть определена по формуле:

$$N_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{I^h}{n_e \langle v_e \cdot \sigma_d \rangle} = \frac{A \cdot N_{\text{OH}}^h}{n_e \langle v_e \cdot \sigma_d \rangle},
 \tag{3}$$

где A – коэффициент Эйнштейна, N и n_e – концентрации тяжелых частиц и электронов, v_e – скорости электронов, σ_d – сечение процесса (2). Сечение диссоциативного возбуждения воды известно, а n_e и распределение электронов по скоростям должны быть измерены.

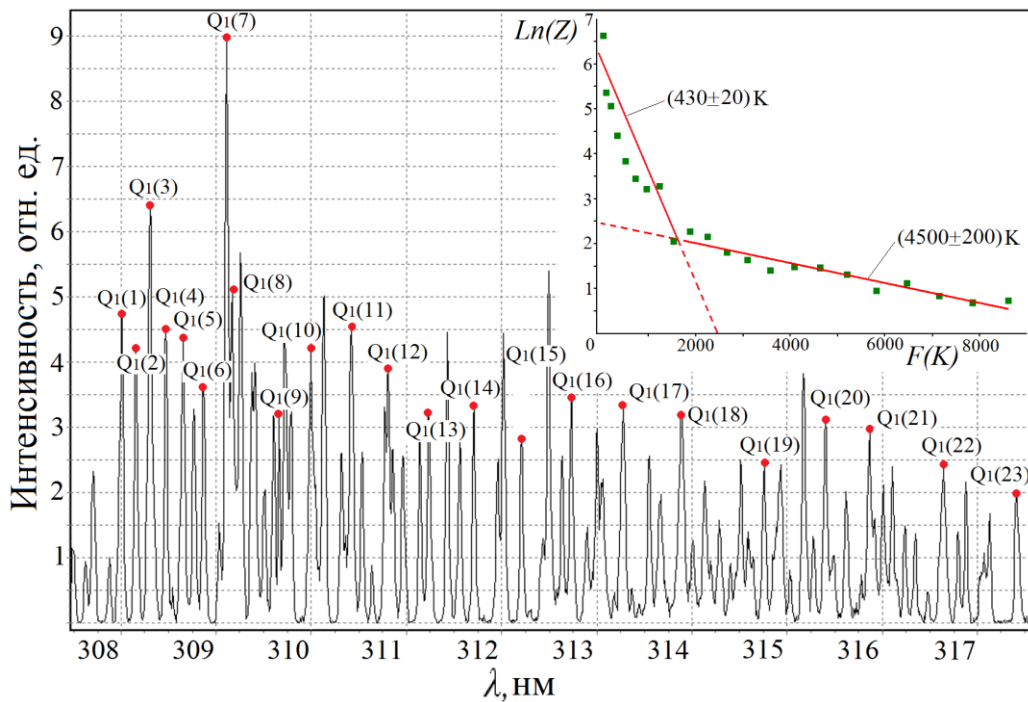


Рис. 1. Фрагмент полосы OH .

Поток частиц, протекающий через плазму, может быть определен из последовательных измерений концентрации этих частиц N через время Δt . Если парциальное давление P частиц в плазме измеряется в Па, объем плазмы V в м³, а время Δt в секундах, то поток газа:

$$Q = \frac{\Delta(P \cdot V)}{\Delta t} = \frac{\Delta N}{N_1} \cdot \frac{T}{273} \cdot V \cdot \frac{1}{\Delta t} \text{ [Па} \cdot \text{м}^3 \cdot \text{с}^{-1}\text{]}, \quad (4)$$

где $N_1 = 2.65 \cdot 10^{20} \text{ м}^{-3}$ – число частиц в 1 м³ при нормальной температуре $T_0 = 273 \text{ К}$ и давлении 1 Па. В таблице 2 приведены сравнительные данные по чувствительности к потокам воды через плазму, полученные в работах различных авторов. По сравнению с известными, данный метод демонстрирует чувствительность на 1.5-2 порядка более высокую и достаточную для удовлетворения требованиям проекта ИТЭР.

Наряду с достоинствами метода следует указать и на определенные проблемы при работе с ним из-за необходимости знать параметры электронной компоненты плазмы. И, хотя стандартный метод зондов Ленгмюра хорошо известен, это дополнение к абсолютным спектральным измерениям может создавать, в отличие от распространенной лабораторной практики, трудности при работе со сложными установками из-за необходимости прямого контакта с плазмой и ограниченного доступа к ней. Такие соображения стали предпосылкой для развития этого метода с целью освободить его от электрических измерений или, по крайней мере, существенно снизить требования к роли сведений о параметрах электронного газа.

Таблица 2. Детектируемые предельно малые скорости потоков молекул паров воды Q , Па·м³·с⁻¹.

Тип установки, год публикации, ссылка	Q , Па·м ³ ·с ⁻¹	Способ детектирования	Примечание
Камера "Течь", 2012, [7]	$3 \cdot 10^{-5}$	Интегральная интенсивность полос гидроксила	Полый катод, локализация 1 см ³ , быстродействие 10 с. Калибровочные смеси.
Стелларатор Л- 2М, 2012-2013, [5]	10^{-4}	Интенсивности линий ксенона	Калиброванный термохимический натекатель паров воды (КТХНПВ).
	10^{-4}		Экстраполяция результатов измерений натекания Хе ($Q=10^{-6}$ Па·м ³ ·с ⁻¹). Предполагается содержание Хе в воде 1%.
Tore Supra, лаборатория CEA-IRFM, 2013, [4]	10^{-2}	Лазерная абсорбционная спектроскопия	Прямые измерения по поглощению света молекулами воды
	10^{-5}		Предельная экстраполяция прямых измерений
	10^{-6}		Планируемый уровень после модификации измерительной схемы
Разрядная камера ПР-2, 2014, [6]	10^{-4}	Возникновение автоколебаний разряда	Эффект заметен при скорости натекания молекул воды 10^{16} с ⁻¹ . Добавки воды по КТХНПВ.
Настоящая методика, 2015	$5 \cdot 10^{-8}$	Абсолютные интенсивности "горячих" линий ОН совместно с зондовыми измерениями.	

В Главе 5. Мультиспектральная актинометрия плазмы [А-2,5,6; Б-6,8,13; В-3] описывается схема, в которой зондовые измерения заменяются измерениями интенсивности спектров комбинаций частиц с сечениями возбуждения, имеющими определенные ограничения, снижающие влияние свойств электронной компоненты на результаты измерений концентраций частиц. Использована техника оптической актинометрии (ОА). Известная в своей основе как метод сравнения интенсивностей линий измеряемых частиц X и частиц сравнения A (актинометр) [8], она была существенно модифицирована:

- при работе по паре частиц для измерений концентрации паров воды H_2O (X) интенсивности линий актинометра A атома инертного газа (Xe) сравнивались непосредственно с интенсивностями "горячих" полос OH с близким сечением диссоциативного возбуждения. При таком подходе концентрация электронов не влияет на измерения, а вид распределения электронов по скоростям учитывается с помощью достаточно малых поправок;

- с целью минимизировать влияние этих поправок на точность измерений, а также расширить перечень измеряемых частиц, впервые продемонстрирована возможность одновременного использования сразу нескольких актинометров и спектральных линий для определения концентраций разных веществ в плазме разряда в инертных газах с добавками паров воды. При использовании двух актинометров (Xe , Ar) установлено изменение концентраций молекул H_2O , OH , H_2 , O_2 и атомов O , H во времени;

- разработана итерационная схема обработки интенсивностей спектральных линий комбинаций актинометрических групп, позволяющая совместно учитывать процессы тушения излучающих состояний и химические превращения плазмообразующего газа;

- построена кинетическая модель плазмохимических реакций, описывающая наблюдаемый состав плазмы. Характер поведения молекул воды и её фрагментов в плазме определяется процессом глубокой диссоциации воды в плазме, достигающей 97%.

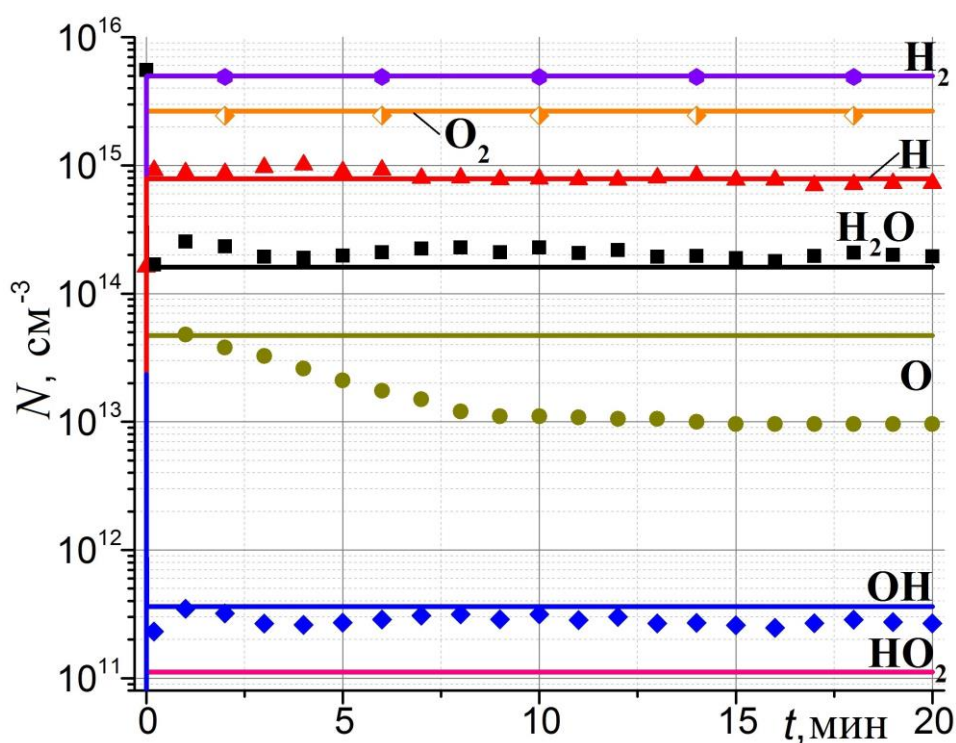


Рис. 2. Изменения концентраций частиц во времени. Плазмообразующий газ He:Xe:Ar=99:1:1 – 0.6 мбар; пары воды – 0.2 мбар.

Пример измерений (точки) и расчета (линии) концентраций ряда частиц в диапазоне более 4 порядков величин приведен на рис. 2.

В Главе 6 "Динамика взаимодействия молекул воды со стенками плазменной камеры" [А-3,4; Б-10] рассматривается влияние температуры стенки стальной камеры на изменение содержания паров воды со временем.

В отсутствие плазмы в разрядном узле результаты измерений (манометрический метод) соответствуют теории физической адсорбции при комнатной температуре. В этих условиях параметры этой полуэмпирической теории для вакуумных камер были известны из ранних экспериментов [9]. Проведенные нами измерения степени покрытия стенок адсорбированными молекулами при более высокой температуре также подтвердили справедливость новых модификаций этой теории [10] для температур, отличных от комнатной в области ≤ 600 К, когда химическими превращениями можно пренебречь.

Наличие в камере локального плазменного источника существенно меняет динамику поведения плотности паров воды, что связывается именно с

появлением новых активных частиц в неравновесных процессах быстрого, по сравнению с адсорбцией, плазмохимического разложения исходных молекул. Измерения (актинометрический метод) приводят к выводу, что наличие этих частиц может существенно изменить механизм десорбции частиц с поверхности и классический механизм физической адсорбции не описывает динамику поведения молекул воды. Напротив, наличие разряда настолько ускоряет и углубляет убыль молекул воды, что при изучении плазмохимической кинетики классической адсорбцией можно в большинстве случаев пренебречь.

Поведение концентраций молекул H_2O показано на рис. 3а (без разряда) и рис. 3б (с разрядом) при температурах стенок 298 К и 395 К соответственно.

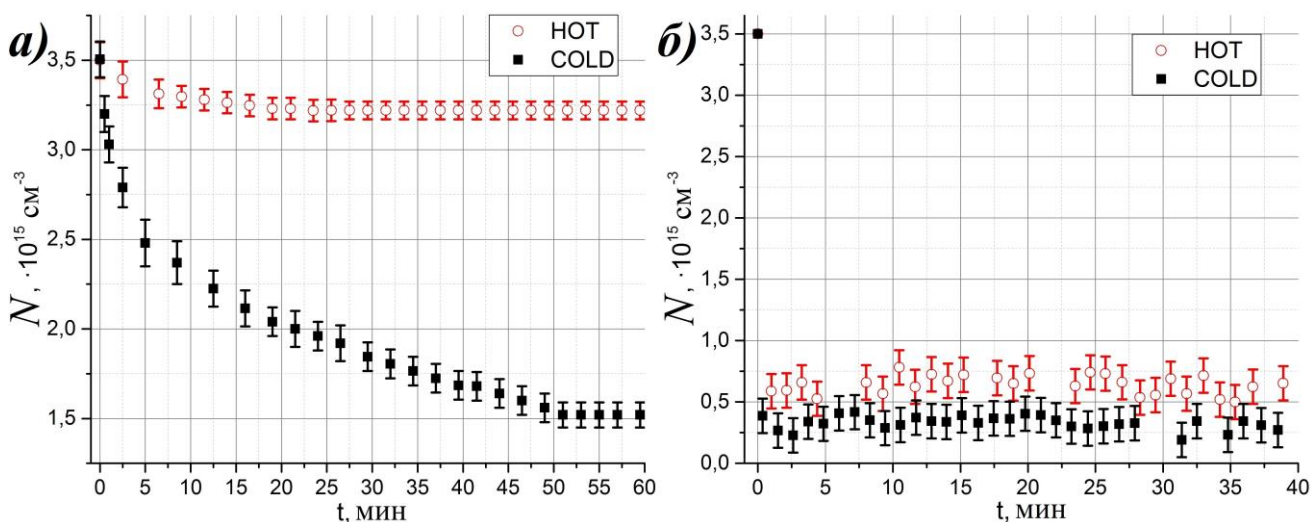


Рис. 3. Поведение концентраций молекул H_2O при температурах стенок 298 К (COLD) и 395 К (HOT): а – без разряда; б – с разрядом.

В Главе 7 "Использование промежуточных химически нестабильных актинометров" [А-8; Б-14] описывается дальнейшее развитие метода мультиспектральной актинометрии.

Продемонстрирована возможность использования интенсивностей спектральных линий химически нестабильных атомов O, H и D для поиска и количественного определения скоростей натекания воды в электривакуумных установках. Эти атомы можно рассматривать как промежуточные актинометры,

концентрации которых определяются с помощью первичных актинометров Ar или Хе.

Наиболее удобным представляется использование пары спектральных линий Na (656.27 нм) и D α (656.09 нм). Этот случай наиболее важен для диагностики реакторов, содержащих дейтерий. Из-за очень близких значений порога возбуждения и длин волн излучения атомы D и H представляют собой почти идеальную актинометрическую пару. В этом случае не только электронные параметры плазмы, но также спектральные характеристики оптических приборов не влияют на результаты измерений. Изменение интенсивностей линий в дублете водород-дейтерий показано на рис. 4.

Масштабирование результатов измерений показывает, что этот метод демонстрирует рекордную чувствительность в ожидаемых условиях в токамаке ИТЭР и может быть использован для диагностики первой стенки реактора на предмет утечек воды из контура охлаждения. Результаты показаны в таблице 3. Индекс "0" соответствует потоку молекул в камеру извне. Без индекса – поток внутри плазмы. Разница связана с глубокой диссоциацией. Данные экстраполяции в область низкого содержания D $_2$ демонстрируют рекордную чувствительность предлагаемого метода при планируемых в ИТЭР давлениях $p_{D_2}=10^{-3}$ - 10^{-4} мбар.

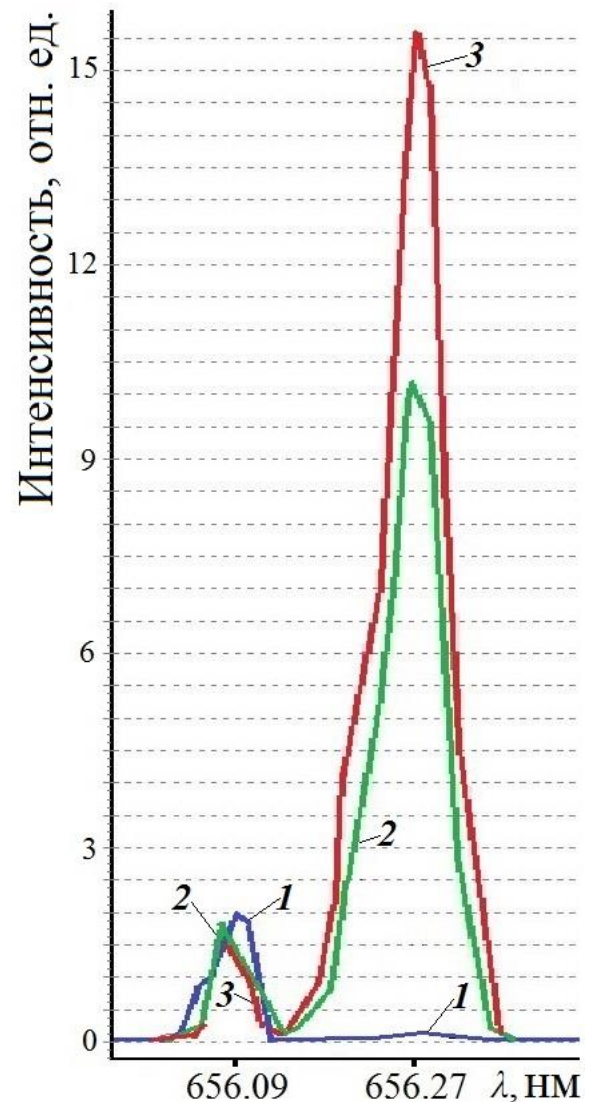


Рис. 4. Спектры дублета D α -Na ($p_{D_2}=0.05$ мбар):

1 – $p_{H_2O}=0$ мбар; 2 – $p_{H_2O}=0.05$ мбар; 3 – $p_{H_2O}=0.1$ мбар.

Таблица 3. Чувствительность метода с промежуточным актинометром к потокам H_2O с использованием Да-На дублета при разном давлении p_{D2} .

p_{D2} , мбар	измерения		экстраполяция		
	$5 \cdot 10^{-2}$	$2.5 \cdot 10^{-2}$	10^{-2}	10^{-3}	10^{-4}
$Q^0(1 \text{ с}), \text{ Па} \cdot \text{ м}^3 \cdot \text{ с}^{-1}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$1.4 \cdot 10^{-6}$	$6 \cdot 10^{-7}$	$6 \cdot 10^{-8}$	$6 \cdot 10^{-9}$
$Q(1 \text{ с}), \text{ Па} \cdot \text{ м}^3 \cdot \text{ с}^{-1}$	$8 \cdot 10^{-8}$	$5 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-8}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-10}$
$Q^0(10 \text{ с}), \text{ Па} \cdot \text{ м}^3 \cdot \text{ с}^{-1}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$1.4 \cdot 10^{-7}$	$6 \cdot 10^{-8}$	$6 \cdot 10^{-9}$	$6 \cdot 10^{-10}$
$Q(10 \text{ с}), \text{ Па} \cdot \text{ м}^3 \cdot \text{ с}^{-1}$	$8 \cdot 10^{-9}$	$5 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-9}$	$2 \cdot 10^{-10}$	$2 \cdot 10^{-11}$

Глава 8 "Сопоставление методов актинометрии и абсорбционной диодной лазерной спектроскопии для измерений концентраций молекул воды" [А-7; Б-11,12; В-3] содержит материалы измерений концентраций молекул H_2O , проведенных прямым методом диодной лазерной спектроскопии (ДЛС) по поглощению на переходах молекулы из основного состояния. Это представлялось целесообразным для проверки эмиссионных методов, в т.ч. оптической актинометрии (ОА), являющимися косвенными. Поскольку из-за слабого поглощения чувствительность этого метода в традиционном однопроходном (длина оптического пути около 1 м) варианте невысока (см. таблицу 2), была использована схема компактного диодного спектрометра с внешним многопроходным резонатором [11]. При этом достигалась эффективная длина оптического пути 50 м при физической длине 52 см и обеспечивалась чувствительность к поглощению на уровне $\sim 3 \cdot 10^{-6} \text{ см}^{-1}$. Для совмещения возможностей проведения измерений одновременно ДЛС и ОА методами была создана оптическая схема на базе кварцевой разрядной трубки с водяным охлаждением стенок.

При использовании достаточно слабой аналитической линии лазерный метод показал чувствительность к потоку паров воды $Q=1.5 \cdot 10^{-6} \text{ Па} \cdot \text{ м}^3 \cdot \text{ с}^{-1}$. При параллельных измерениях лазерный и актинометрический методы дали хорошо согласующиеся результаты. Их сопоставление в виде зависимостей

концентрации молекул воды в положительном столбе тлеющего разряда от тока показаны на рис. 5.

Чувствительность лазерного метода в условиях проводимых экспериментов может быть увеличена до $Q=1.5 \cdot 10^{-7}$ Па·м³·с⁻¹, если работать с газами с меньшей влажностью и использовать более сильную аналитическую линию ИК поглощения, что близко к чувствительности эмиссионных измерений. При этом, однако, при работе с реальными установками лазерный метод гораздо сложнее в техническом отношении т.к. требует размещения высокоотражающей и стабильной резонаторной оптики с включенной в нее плазмой.

В **Заключении** сформулированы основные выводы диссертационной работы.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Разработан комплекс средств определения малых концентраций атомов и молекул в неравновесной плазме. Он включает технику спектральных эмиссионных и зондовых измерений, средства контроля состава плазмообразующих газов, вариации температуры стенок электровакуумной камеры. Разряд в виде полого катода моделирует условия пристеночной плазмы термоядерного реактора в местах соединения элементов стеночного blankets.

2. Предложен и реализован новый метод измерений концентраций молекул воды в плазме, использующий комбинацию зондовых измерений и

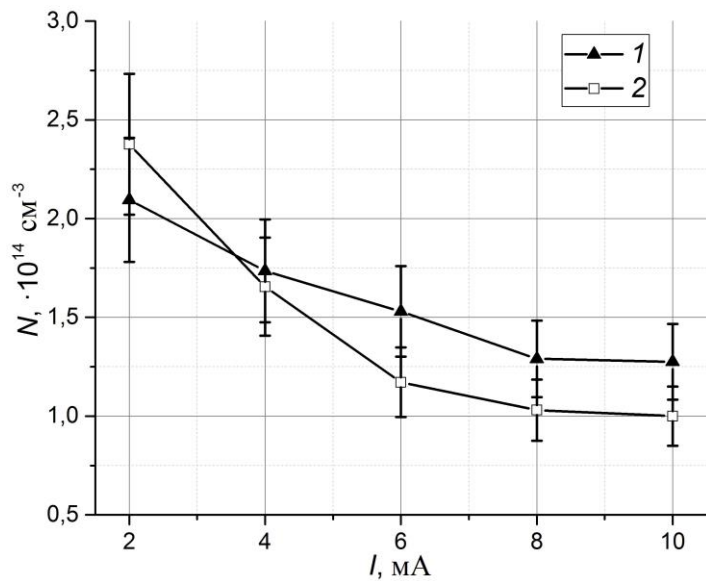


Рис. 5. Результаты измерений концентрации молекул воды N при разных токах разряда: 1 – метод ДЛС; 2 – метод ОА. Исходная концентрация молекул воды $5 \cdot 10^{15}$ см⁻³.

абсолютные светимости линий в электронно-колебательно-вращательной структуре спектра радикала гидроксила, образовавшегося при диссоциативном возбуждении молекул воды электронами.

3. Расширен метод оптической актинометрии для измерений химического состава многокомпонентной плазмы, использующий одновременно несколько основных и промежуточных актинометров (мультиспектральная актинометрия). Динамика изменений химического состава и тушение излучающих состояний частиц столкновениями определяются совместно. Построенная модель плазмохимических процессов находится в согласии с экспериментом.

4. Использование метода мультиспектральной актинометрии позволяет измерять концентрации молекул воды и ее производных без привлечения зондовых измерений с оцениваемой точностью (10-20)%. Проведены систематические измерения концентраций частиц при различных составах влажного плазмообразующего газа, изучена роль нагрева стенок камеры. Актинометрические и лазерные измерения в условиях положительного столба тлеющего разряда дают согласующиеся результаты.

5. Определена чувствительность измерений потока молекул воды $Q^0 < 10^{-7}$ Па·м³·с⁻¹, проникающих в рабочую камеру извне, что отвечает проектным требованиям реактора ИТЭР. При этом степень диссоциации воды достигает 96-98%, поток молекул воды внутри камеры в плазме может измеряться с чувствительностью $Q < 4 \cdot 10^{-9}$ Па·м³·с⁻¹.

Цитируемая литература

[1] ITER, Final Design Report, 2001. G31 DDD 14 01_07-19 W0.1. Section 3.1 Vacuum pumping and fuelling systems.

[2] L. Gargiuloa, P. Bayetti, V. Bruno, J.-C. Hatchressian, C. Hernandez, M. Houry, D. Keller, J.-P. Martins, Y. Measson, Y. Perrot, F. Samaille. Operation of an ITER relevant inspection robot on Tore Supra tokamak // Fusion Engineering and Design. 2009, V. 84, No. 2-6, P. 220-223.

[3] И.В. Визгалов, В.А. Курнаев, В.Н. Колесников, Д.В. Мозгрин, В.М. Смирнов, Н.Н. Трифонов. Анализ возможности диагностики течи воды из системы охлаждения в вакуумную камеру ИТЭР // Вопросы атомной науки и техники. Серия Термоядерный синтез. 2002, т. 25, №3-4, с. 125-136.

[4] Au. Durocher, A. Bruno, M. Chantant, L. Gargiulo, T. Gherman, J-C. Hatchressian, M. Houry, R. Le, D. Mouyon. Remote leak localization approach for fusion machines // Fusion Engineering and Design. 2013, V. 88, No. 6-8, P. 1390-1394.

[5] V. Kurnaev, O. Afonin, A. Antipenkov, N. Koborov, T. Mukhammedzyanov, V. Ochkin, R. Pearced, E. Pleshkov, F. Podolyako, I. Sorokin, V. Urusov, I. Vizgalov, G. Voronov, K. Vukolov, L. Worth, L-2M team. Spectroscopic localization of water leaks in iter // Fusion Engineering and Design. 2013, V. 88, No. 6-7, P. 1414-1417.

[6] I. Sorokin, I. Vizgalov, K. Gutorov, F. Podolyako. Concerning feasibility of water microleakage diagnostics by auto-oscillating discharge // Physics Procedia. 2015, V. 71, P. 116-120.

[7] А.Б. Антипенков, О.Н. Афонин, В.Н. Очкин, С.Ю. Савинов, С.Н. Цхай. Экспериментальная проверка метода обнаружения микротечей воды в плазменно-вакуумной камере по спектру гидроксила // Физика плазмы. 2012, т. 38, № 3, с. 221-225.

[8] В.Н. Очкин. Спектроскопия низкотемпературной плазмы // М.: Физматлит, 2010. – 592 с.

[9] С. Бранауер. Адсорбция газов и паров // М.: ИЛ, 1948. – 426 с.

[10] Л.Н. Розанов. Десорбционное газовыделение конструкционных вакуумных материалов // Вакуумная техника и технология. 2011, т. 21, № 3, с. 143-150.

[11] D.S. Baer, J.B. Paul, M. Gupta, A. O'Keefe. Sensitive absorption measurements in the near-infrared region using off-axis integrated-cavity-output spectroscopy // Applied Physics B: Lasers and Optics. 2002, V. 75, No. 2, P. 261-265.

ПУБЛИКАЦИИ АВТОРА ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

А. Публикации в научных рецензируемых журналах, индексируемых в базах Web of Science, Scopus:

- A.1. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин, О.Н. Афонин, А.Б. Антипенков. Измерение концентраций молекул воды в плазме с помощью комбинации спектральных и зондовых методов // Физика плазмы. 2015, т. 41, № 9, с. 767-777. DOI: 10.7868/S0367292115090036 [переводная версия: Plasma Physics Reports. 2015, V. 41, No. 9, P. 705-714. DOI: 10.1134/S1063780X15090032]
- A.2. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин. Детектирование примесей воды в плазме методом оптической актинометрии // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2015, т. 42, № 9, с. 30-35. [переводная версия: Bulletin of the Lebedev Physics Institute. 2015, V. 42, No. 9, P. 273-276. DOI: 10.3103/S1068335615090055]
- A.3. A.V. Bernatskiy, V.N. Ochkin, R.N. Bafoev. The role of the heating of the vacuum chamber on the water content in plasma and gas // Journal of Physics: Conference Series. 2016, V. 747, 012013 (4pp). DOI: 10.1088/1742-6596/747/1/012013
- A.4. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин, Р.Н. Бафоев, А.Б. Антипенков. Динамика плотности молекул воды в разрядной камере, заполненной влажным газом при низком давлении // Физика плазмы. 2016, т. 42, № 10, с. 949-954. DOI: 10.7868/S0367292116100012 [переводная версия: Plasma Physics Reports. 2016, V. 42, No. 10, P. 990-995. DOI: 10.1134/S1063780X16100019]
- A.5. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин, Р.Н. Бафоев. Влияние распределения электронов по энергиям на измерение концентраций атомов методом оптической актинометрии // Краткие сообщения по физике ФИАН. 2016, т. 43, № 6, с. 18-23. [переводная версия: Bulletin of the Lebedev Physics Institute. 2016, V. 43, No. 6, P. 195-198. DOI: 10.3103/S1068335616060038]
- A.6. A.V. Bernatskiy, V.N. Ochkin, I.V. Kochetov. Multispectral actinometry of water and water derivate molecules in moist inert gas discharge plasmas //

Journal of Physics D: Applied Physics. 2016, V. 49, No. 39, 395204 (10pp).
DOI: 10.1088/0022-3727/49/39/395204

- A.7. A.V. Bernatskiy, V.V. Lagunov, V.N. Ochkin, S.N. Tskhai. Study of water molecule decomposition in plasma by diode laser spectroscopy and optical actinometry methods // Laser Physics Letters. 2016, V. 13, No. 7, 075702 (4pp).
DOI: 10.1088/1612-2011/13/7/075702
- A.8. A.V. Bernatskiy, V.N. Ochkin. Detection of water molecules in inert gas based plasma by the ratios of atomic spectral lines // Plasma Sources Science and Technology. 2017, V. 26, No. 1, 015002 (5pp). DOI: 10.1088/0963-0252/26/1/015002

Б. Тезисы докладов в сборниках трудов конференций:

- Б.1. О.Н. Афонин, А.В. Бернатский, В.Н. Очкин, С.Ю. Савинов, С.Н. Цхай. Detection of water microleakages in plasma vacuum chambers by using the hydroxyl spectrum // Contributed Papers of VII International Conference Plasma Physics and Plasma Technology (PPPT-7). Minsk "Kovcheg", 2012. Vol. I, P. 315-318.
- Б.2. О.Н. Афонин, А.В. Бернатский, В.Н. Очкин, С.Ю. Савинов, С.Н. Цхай. Измерение малых концентраций молекул воды спектроскопическим методом в разряде с полым катодом // Материалы XIX научно-технической конференций "Вакуумная наука и техника". М.: МИЭМ, 2012. С. 51-54.
- Б.3. О.Н. Афонин, А.В. Бернатский. Измерение концентраций молекул воды при помощи абсолютных измерений интенсивности спектра гидроксила в разряде с полым катодом // Сборник трудов V Всероссийской молодёжной конференций по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики. М.: РИИС ФИАН, 2013. С. 165.
- Б.4. О.Н. Афонин, А.В. Bernatskiy, V.N. Ochkin. Measurement concentration of water molecules by the absolute intensity spectrum hydroxyl in glow discharge with hollow cathode // The book of abstracts of Summer School on the Physics of Plasma-Surface Interactions. М.: NRNU MEPHI, 2014. P. 14.

- Б.5. О.Н. Афонин, А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин. Измерение абсолютных концентраций молекул воды в электровакуумной камере по эмиссионному спектру // Сборник трудов III Международной научно-практической конференций "Инновации в науке, производстве и образовании". ИНПО-2014. Рязань: РГУ им. С.А. Есенина, 2014. С. 22-25.
- Б.6. A.V. Bernatskiy. Using optical actinometer for water microleakages diagnostics in the glow discharge with the hollow cathode // Contributed Papers of VIII International Conference Plasma Physics and Plasma Technology (PPPT-8). Minsk "Kovcheg", 2015. Vol. I, P. 149-152.
- Б.7. A.V. Bernatskiy, A.E. Burdakova, A.S. Kostenko, V.N. Ochkin, D.V. Loginov, S.N. Tskhai. Investigation of plasma luminescence intensity near the dust particles in DC glow discharge in a mixture of argon and helium // Contributed Papers of VIII International Conference Plasma Physics and Plasma Technology (PPPT-8). Minsk "Kovcheg", 2015. Vol. II, P. 343-346.
- Б.8. А.В. Бернацкий, Р.Н. Бафоев. Определение концентрации атомов кислорода в плазме с примесями воды методом оптической актинометрии // Сборник трудов VI Всероссийской молодёжной конференций по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики. М.: РИИС ФИАН, 2015. С. 62.
- Б.9. А.В. Бернацкий, Д.В. Логинов. Оптические спектры плазмы с присутствием макрочастиц // Сборник трудов VI Всероссийской молодёжной конференций по фундаментальным и инновационным вопросам современной физики. М.: РИИС ФИАН, 2015. С. 63.
- Б.10. Р.Н. Бафоев, А.В. Бернацкий, Е.А. Кунчева. Измерение концентрации молекул воды на установке «Течь» при разных тепловых режимах // Сборник научных трудов II международной конференции "Плазменные, лазерные исследования и технологии". М.: НИЯУ МИФИ, 2016. С. 30.
- Б.11. А.В. Бернацкий, В.В. Лагунов, В.Н. Очкин. Измерение концентрации водяных паров в тлеющем разряде методами диодной лазерной спектроскопии и оптической актинометрии // Труды XXIV

Международной Конференции "Лазерно-информационные технологии в медицине, биологии, геоэкологии и транспорте – 2016". Новороссийск: Изд-во ГМУ, 2016. С. 174.

- Б.12. А.В. Бернацкий, В.В. Лагунов, И.В. Николаев, С.Н. Цхай. Измерение концентрации водяных паров в тлеющем разряде методами диодной лазерной спектроскопии и оптической актинометрии // XXV Съезд по спектроскопии: Сборник тезисов. М.: МПГУ, 2016. С. 195-196.
- Б.13. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин. Спектральное определение малых примесей воды в плазме электровакуумных установок // XXV Съезд по спектроскопии: Сборник тезисов. М.: МПГУ, 2016. С. 49.
- Б.14. А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин, И.В. Кочетов, П.О. Ханенко. Исследование поведения концентраций атомов кислорода и водорода в плазме с примесями паров воды // Современные средства диагностики плазмы и их применение: Сборник тезисов докладов X Конференции. М.: НИЯУ МИФИ, 2016. С. 21-24.

В. Иные публикации по теме диссертации:

- В.1. А.Б. Антипенков, О.Н. Афонин, А.В. Бернацкий, В.Н. Очкин. Измерение концентрации молекул воды по абсолютной интенсивности спектра гидроксила в тлеющем разряде с полым катодом // Ядерная физика и инжиниринг. 2014, т. 5, № 7-8, с. 644-648. DOI: 10.1134/S2079562914070021
- В.2. С.Н. Андреев, А.В. Бернацкий, А.С. Костенко, В.В. Лагунов, С.Н. Цхай, А.Н. Яцкевич. Автоматизированная схема измерений распределений электронов по энергиям в плазме полого катода и комплексной плазме // Препринт №14 ФИАН им. П.Н. Лебедева. М.: РИИС ФИАН, 2015. – 12 с.
- В.3. В.Н. Очкин, А.В. Бернацкий. Новые методы определения концентраций молекул воды и её фрагментов в плазме по эмиссионным электронным спектрам // М.: РИИС ФИАН, 2016. – 78 с. ISBN: 978-5-902622-32-1