

О методе диагностики плазменной сепарации по спектрам излучения

Р. А. Усманов и А. Д. Мельников

Объединенный институт высоких температур РАН, Ижорская ул., 13, стр.2, Москва
125412, Россия

E-mail: ravus46@yandex.ru

Статья поступила в редакцию 17 июля 2020 г.

Аннотация. Методы диагностики процесса плазменной сепарации веществ являются не только средством контроля выполнения условий, приводящих к массовому разделению компонентов, но и средством демонстрации непосредственно эффекта сепарации. Одним из актуальных методов диагностики является анализ спектров излучения плазменной системы. В статье рассматривается спектральный метод измерения параметров источника плазмы и эффекта отклонения ионов из плазменной струи. Предложенным методом измерены температуры заселения возбужденных уровней атомов и ионов свинца и серебра — пары веществ, моделирующих динамику движения сепарируемых потоков, а также пространственное распределение интенсивности излучения ионов свинца в процессе отклонения. Полученные данные актуальны для разрабатываемой технологии плазменной сепарации отработавшего ядерного топлива по методу В.П. Смирнова. <https://doi.org/10.33849/2020107>

1. ВВЕДЕНИЕ

Сегодня ведется активное развитие технологий, направленных на решение экологических проблем. Одна из перспективных ветвей таких технологий — это плазменная сепарация веществ, которая разрабатывается в целях переработки отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) [1, 2] и замыкания ядерного топливного цикла. Также она может быть использована для переработки редкоземельных элементов [3].

Схема плазменной сепарации по методу В.П. Смирнова [4] предполагает создание плазменного потока ОЯТ, его разделение по массам в специальной конфигурации электрического и магнитного полей и сбор сепарированного вещества. Высокая производительность метода обеспечивается проведением процесса сепарации в присутствии буферной плазмы, задача которой состоит в формировании нужной конфигурации электрического поля [5] и компенсации объемного заряда разделяемых пучков.

Для верификации эффекта сепарации и контроля всего процесса необходимо иметь систему диагностики, которая позволит подтверждать не только то, что вся плазменная система работает в разрешенном диапазоне параметров, но и то, что происходит непосредственное разделение. Одним из способов контроля процесса сепарации является анализ спектров плазменного излучения. Этот подход предлагается обсудить в настоящей статье.

Модельный эксперимент по плазменной сепарации можно описать следующим образом. В цилиндрической камере, заполненной аргоном, располагается источник плазмы разделяемых веществ, например, смеси свинца ($m_{\text{Pb}} = 207$ а.е.м) и серебра ($m_{\text{Ag}} = 108$ а.е.м) [6]. Система находится в осевом магнитном поле. При помощи электродов, расположенных на торцах цилиндрической камеры, зажигается высоковольтный буферный разряд в аргоне [7]. Неоднородное по радиусу электрическое поле буферного разряда вытягивает ионы из плазменного потока источника. Траектории вытянутых ионов, в зависимости от массы, разделяются в пространстве [8].

Целью настоящей статьи является рассмотрение методов диагностики источника плазмы разделяемых веществ и эффекта отклонения ионных потоков, осно-

ванных на анализе спектров излучения в плазменном сепараторе, и их экспериментальная проверка.

2. ОПИСАНИЕ МЕТОДА СПЕКТРАЛЬНОЙ ДИАГНОСТИКИ

Задачу спектральной диагностики процесса плазменной сепарации можно разделить на две составляющие — определение параметров источника, создающего разделяемый плазменный поток смеси веществ (Pb и Ag) и определение пространственных характеристик движения ионов в процессе сепарации. В статье предлагается два подхода к диагностике каждого из направлений.

2.1. Диагностика параметров плазменного источника

Интенсивность спектральных линий излучения плазмы определяется множеством параметров, однако анализ небольшой совокупности характеристик линий позволяет оценивать интегральные свойства системы. Интенсивность I_{ij} спектральной линии, соответствующая переходу частицы между двумя энергетическими состояниями E_i и E_j , пропорциональна концентрации частиц n_i , находящихся в верхнем состоянии i , вероятности излучения A_{ij} , а также обратно пропорциональна длине волны λ_i кванта излучения [9]:

$$I_{ij} \sim A_{ij}n_i/\lambda_i. \quad (1)$$

В исследуемом источнике плазмы для плазменного сепаратора концентрация заряженных частиц находится на уровне 10^{12} – 10^{13} см $^{-3}$ [6]. В статье мы предполагаем, что для высоко лежащих уровней атомов и ионов выполняются условия локального термодинамического равновесия (ЛТР). Согласно оценкам в модифицированном диффузионном приближении [10] вероятность столкновительных переходов между высоко лежащими возбужденными уровнями атомов Pb становится одного порядка с вероятностями излучения, то есть при указанных концентрациях появляются предпосылки для использования модели ЛТР. Отметим, что наиболее корректное описание плазменных процессов моделью ЛТР возможно при несколько больших concentra-

циях, когда вероятность радиационных переходов станет мала по сравнению с вероятностью столкновительных.

Если предположить, что в анализируемой плазме реализуется термодинамическое равновесие [9], тогда заселение возбужденных уровней происходит в соответствии с формулой Больцмана:

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{g_i}{U(T_{pop})} \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T_{pop}}\right), \quad (2)$$

где n_0 — концентрация частиц в основном состоянии, g_i — статистический вес возбужденного уровня, k_B — постоянная Больцмана, T_{pop} — температура заселения, $U(T_{pop})$ — статистическая сумма.

Рассмотрев относительные интенсивности двух спектральных линий I_{ij} и I_{ab} одного элемента, и подставляя (2) в (1) получим:

$$\frac{I_{ij}}{I_{ab}} = \frac{A_{ij} g_i \lambda_a}{A_{ab} g_a \lambda_i} \exp\left(\frac{E_a - E_i}{k_B T_{pop}}\right). \quad (3)$$

Формула (3) не требует знаний о концентрациях частиц. Из нее следует возможность определить температуру заселения, измерив интенсивности двух спектральных линий при известных данных о параметрах энергетических переходов. Применив (3) для нескольких пар спектральных линий, и отложив на графике зависимость логарифма отношения интенсивностей от разности между энергиями соответствующих возбужденных уровней, получится прямая. Ее наклон характеризует температуру заселения T_{pop} .

Для оценки концентраций частиц на основных уровнях, по-прежнему будем предполагать выполнение формулы (2). Зная T_{pop} и используя (1)–(3) для спектральных линий элементов смеси, свинца и серебра, оценим относительную концентрацию частиц в основном состоянии по формуле:

$$\frac{n_0^{\text{Pb}}}{n_0^{\text{Ag}}} = \frac{I_{ij}^{\text{Pb}} \lambda_{ij}^{\text{Pb}} A_{ab}^{\text{Ag}} g_a^{\text{Ag}} U^{\text{Pb}}(T_{pop})}{I_{ab}^{\text{Ag}} \lambda_{ab}^{\text{Ag}} A_{ij}^{\text{Pb}} g_i^{\text{Pb}} U^{\text{Ag}}(T_{pop})} \exp\left(\frac{E_a^{\text{Ag}} - E_i^{\text{Pb}}}{k_B T_{pop}}\right). \quad (4)$$

В дальнейшем для анализа интегральных характеристик плазменной струи источника будут использоваться формулы (3) и (4). Так как в камере плазменного сепаратора помимо источника плазмы существует аргоновый буферный разряд, для анализа были подобраны спектральные линии частиц Pb и Ag, которые не накладываются на линии аргона и друг на друга. Такие спектральные линии представлены в таблице 1. Данные о параметрах энергетических переходов взяты из источников [11, 12]. Данные о статистических суммах взяты из [11].

2.2. Диагностика пространственных характеристик движения ионов

Один из возможных вариантов определения пространственного распределения концентраций ионов в камере сепаратора — это диагностика распределения интенсивности сильных спектральных линий ионов разделяемых частиц. Анализ излучения буферного разряда, а также излучения источника плазмы ионов свинца и серебра показал, что линии, которые не накладываются

Таблица 1. Данные о параметрах анализируемых в экспериментах спектральных линиях Pb I, Pb II, Ag I, Ag II.

Элемент	$\lambda_{ij}(\text{нм})$	$A_{ij}(\text{с}^{-1})$	$E_i(\text{эВ})$	g_i
Pb I	261.50	1.98×10^8	5.71	5.4
	283.39	4.90×10^7	4.38	3
	287.42	3.80×10^7	5.63	5
	364.06	3.20×10^7	4.38	3
	367.25	3.10×10^7	6.04	3
	722.90	8.50×10^5	4.38	3
Pb II	220.42	4.90×10^8	7.37	2
	424.61	1.15×10^8	11.47	8
	438.77	1.56×10^8	11.47	6
	504.26	9.00×10^7	11.69	4
Ag I	328.16	1.40×10^8	3.78	4
	338.39	1.30×10^8	3.66	2
	546.55	8.60×10^7	6.04	6
	768.78	1.87×10^7	5.28	2
Ag II	243.85	2.90×10^8	9.94	5
	276.83	1.01×10^7	10.19	7
	793.02	3.20×10^7	17.93	5

друг на друга, а также на линии излучения буферного газа, в системе существуют. Для регистрации пространственного распределения ионов свинца выбрана линия Pb II 537.2 нм. Для регистрации ионов серебра может быть выбрана линия Ag II 243.8 нм. Пространственное распределение излучения предлагается собирать при помощи вращающегося объектива, фокусирующего параллельный пучок (с минимальным угловым расхождением) в световод. Эффективно, то есть с достаточным спектральным разрешением, “выделить” излучение именно выбранной линии возможно, если в качестве анализирующего прибора использовать монохроматор.

3. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Проверка спектральных методов диагностики, описанных выше, производилась в тестовом эксперименте. Схема эксперимента и диагностики представлена на рисунке 1. В цилиндрической камере экспериментальной модели плазменного сепаратора длиной ≈ 2 м, диаметром ≈ 1 м [5], в присутствии аксиального магнитного поля 1.3 кГс, зажигался дуговой разряд с термоэмиссионным катодом (источник плазмы) в парах смеси свинца и серебра [6]. Масса загружаемой смеси составляла ≈ 20 грамм. Ось разряда была параллельна оси камеры сепаратора и находилась на расстоянии 180 мм от нее. Пары смеси поступали в разрядный промежуток из молибденового тигля (на рисунке не показан), который подогревался индукционным методом. Температура тигля (T_c) измерялась пирометром CHINO CZN8L в течение всего эксперимента. Для отклонения плазменного потока в камере сепаратора зажигался отражательный разряд в атмосфере аргона. Давление аргона составляло 0.2 мТорр. Отражательный разряд зажигался при помощи набора кольцевых электродов, расположенных на торцах камеры, к которым прикладывалось отрица-

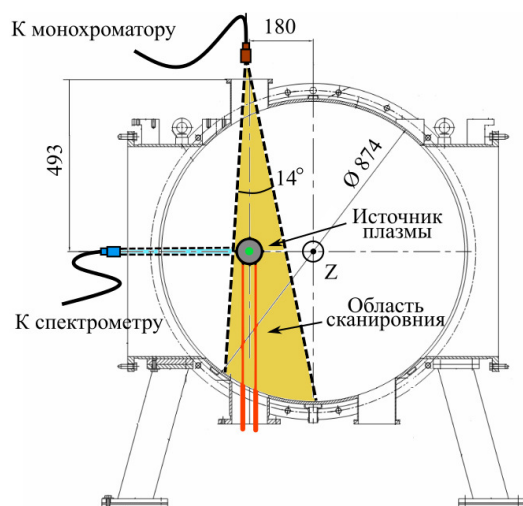


Рисунок 1. Схема эксперимента. Исследуемая плазменная струя источника (зеленый круг) параллельна оси Z . Регистрация излучения производится в плоскости, ей перпендикулярной.

тельное напряжение относительно “заземленной” камеры. Центральный электрод был выполнен в виде подогреваемой термоэмиссионной таблетки LaB_6 диаметром 20 мм. Электрическое поле, генерируемое буферным отражательным разрядом, отклоняло ионы свинца и серебра от первоначального направления распространения.

В эксперименте, длительностью около 1800 секунд, реализовывалось четыре характерных режима совместного функционирования источника плазмы (включен всегда, $I = 22 \pm 2$ А, $U = 35 \pm 1$ В) и буферного разряда ($I = 10$ А, $U = -500$ В):

- $T_c \approx 1080$ °С, буферный разряд выключен (0–600 с);
- $T_c \approx 1080$ °С, буферный разряд включен (600–1000 с);
- $T_c \approx 1250$ °С, буферный разряд выключен (1000–1600 с);
- $T_c \approx 1250$ °С, буферный разряд включен (1600–1800 с).

Проводился анализ излучения плазменной струи источника плазмы, а также пространственного распределения свечения ионов свинца в области расположения плазменной струи. Излучение плазменной струи собиралось при помощи стационарного ахроматического объектива и передавалось на вход широкодиапазонного спектрометра AvaSpec-ULS2048L-2-USB2. Зарегистрированные в эксперименте спектры излучения анализировались с использованием подхода, описанного в разделе 2. Пространственное распределение излучения ионов свинца регистрировалось подвижным объективом и передавалось на вход монохроматора МДР-2. Монохроматор был настроен на сбор излучения вблизи длины волны 537.2 нм соответствующей спектральной линии Рб II. Объектив двигался таким образом, чтобы производить сканирование пространства внутри “веера” с углом раскрытия $\approx 12^\circ$ (рисунок 1).

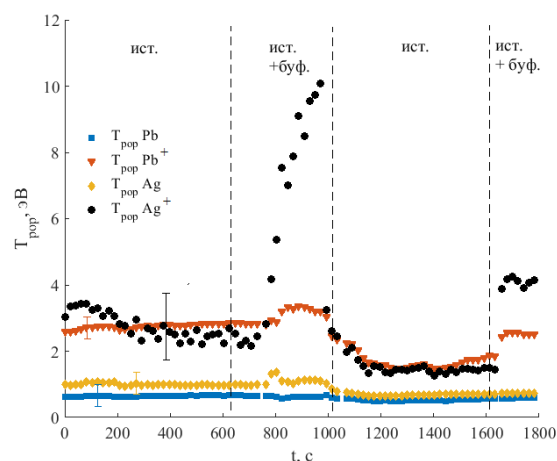


Рисунок 2. Поведение температур заселения Рб, Рб⁺, Ag, Ag⁺.

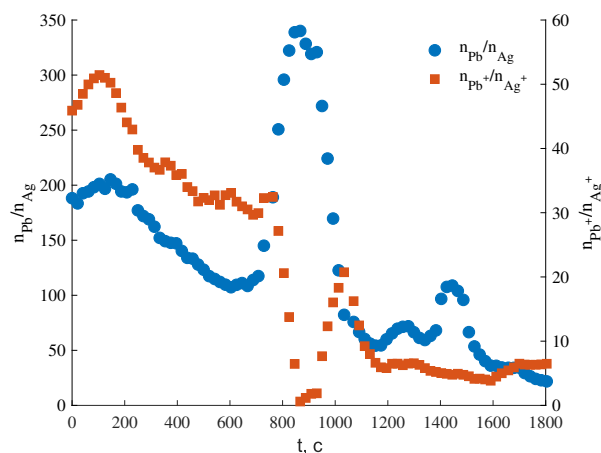


Рисунок 3. Поведение относительных концентраций атомов и ионов.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

В ходе описанного эксперимента регистрировались спектры излучения струи источника плазмы в диапазоне 200–900 нм. Регистрация производилась каждые 20 секунд. Каждый спектр излучения был обработан, и из полученных данных, согласно формуле (3) были определены температуры заселения атомов и ионов свинца и серебра. Результаты представлены на рисунке 2. Во временном диапазоне 600–1000 с наблюдается ошибка определения температуры заселения ионов серебра.

Используя полученные данные по температурам заселения, в соответствии с формулой (4), были вычислены относительные концентрации атомов и ионов свинца и серебра в течение эксперимента. Результаты представлены на рисунке 3. Относительные концентрации атомов вычислены по линиям Рб I 364.1 нм и Ag I 338.4 нм, ионов — по линиям Рб II 424.6 нм и Ag II 276.8 нм.

Согласно приведенным данным, концентрация частиц свинца убывает в течение эксперимента относительно концентрации частиц серебра. Это поведение концентрации согласуется с зависимостью давления паров исследуемых элементов. В первой половине экс-

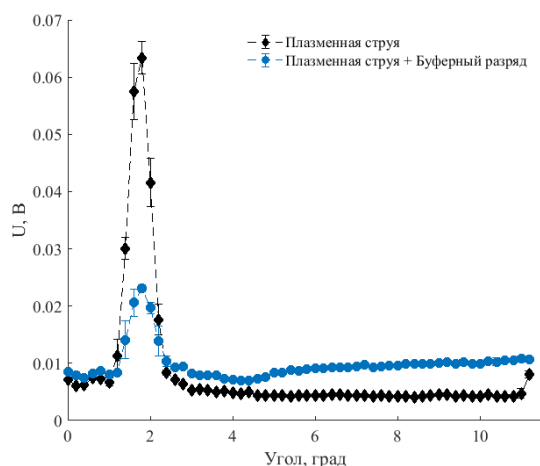


Рисунок 4. Профили излучения спектральной линии Рб II 537.2 нм.

перимента в основном происходило испарение свинца ($1080\text{ }^{\circ}\text{C}$, $P_s(\text{Pb}) \sim 100\text{ Па}$, $P_s(\text{Ag}) \sim 1\text{ Па}$ [13]), далее мы увеличили температуру тигля (до $1250\text{ }^{\circ}\text{C}$) и уже серебро активно испарялось, при условии того, что свинца в тигле становилось все меньше. На рисунке 3 также видна особенность в определении концентрации во временном диапазоне 600–1000 с, связанная с ошибкой определения температуры заселения серебра.

Результаты диагностики пространственного распределения излучения ионов свинца (спектральной линии 537.2 нм) представлены на рисунке 4. Профили излучения регистрировались в режиме с включенным и отключенным буферным разрядом.

Сравнение сигналов показывает, что при включении буферного разряда распределение яркости излучения в пространстве изменяется — величина максимума, соответствующего положению плазменной струи, уменьшается. Отношение площадей под пиками, соответствующими положению плазменной струи, составляет 2.5, то есть, приблизительно половина ионов в эксперименте уходит из области первоначального расположения струи. Движение ионов серебра вне области расположения пучка определить не удалось из-за присутствия интенсивного непрерывного спектра излучения буферного разряда. Непрерывное излучение приводит к ошибке определения интенсивности линии 537.2 нм, уменьшить ошибку удастся, если увеличить концентрацию плазмы в сепарируемом потоке.

5. ВЫВОДЫ

Резюмируя результаты измерений, можно сказать, что с помощью предложенных методов спектральной диагностики возможно отслеживать характеристики плазменной струи источника в эксперименте, определять температуры заселения тяжелых частиц плазмы и относительное изменение концентраций частиц в процессе сепарации. Также оказывается возможным дополнительно верифицировать эффект отклонения ионного потока и количественно оценить долю вещества, отклоненного от первоначального направления распространения. Заметим, что для определения траектории движения ионов во всей области сепарации, необходимо увеличить интенсивность спектральных линий, увеличив концентрацию ионов в источнике. Вероятно, это удастся сделать при исследовании эффекта сепарации при большей производительности.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Долголенко Д А и Муромкин Ю А 2017 *Усп. физ. наук* **187** 1071–1096
2. Zweben S J, Gueroult R and Fisch N J 2018 *Phys. Plasmas* **25** 090901
3. Gueroult R, Rax J M and Fisch N J 2018 *J. Cleaner Prod.* **182** 1060–1069
4. Смирнов В П, Самохин А А, Ворона Н А и Гавриков А В 2013 *Физика плазмы* **39** 523–533
5. Liziakin G, Gavrikov A, Usmanov R, Timirkhanov R and Smirnov V 2017 *AIP Adv.* **7** 125108
6. Antonov N N, Usmanov R A, Gavrikov A V and Smirnov V P 2019 *J. Phys.: Conf. Ser.* **1147** 012133
7. Liziakin G, Gavrikov A and Smirnov V 2020 *Plasma Sources Sci. Technol.* **29** 015008
8. Смирнов В П, Гавриков А В, Сидоров В С, Тараканов В П, Тимирханов Р А, Кузьмичев С Д, Усманов Р А и Ворона Н А 2018 *Физика плазмы* **44** 961–970
9. Лохте-Хольтгревен В 1971 *Методы исследования плазмы* (Мир)
10. Биберман Л М, Воробьев В С и Якубов И Т 1982 *Кинетика неравновесной низкотемпературной плазмы* (Наука)
11. Kramida A *et al* 2019 NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.7.1), Available: <https://physics.nist.gov/asd>. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD.
12. Kazakov V V, Kazakov V G, Kovalev V S, Meshkov O I and Yatsenko A S 2017 *Phys. Scr.* **92** 105002
13. Григорьев И С и Мейлихов Е З (ред.) 1991 *Физические величины* (Энергоатомиздат)