

УДК 539.2

## Исследование проницаемости трития в материалы первой стенки термоядерного реактора с применением магнитного микроскопа

Э. А. Азизов, А. И. Маркин, Н. И. Сыромятников, В. Е. Черковец  
ГНЦ РФ “Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований”, г. Троицк, Россия

Н. Н. Рязанцева, В. Н. Тебус  
ГНЦ РФ “Всероссийский научно-исследовательский институт неорганических материалов им. А. А. Бочвара”, Москва, Россия

*Выполнены измерения распределения трития в образцах материалов из молибдена с напыленным слоем титана толщиной ~7 мкм, насыщенным тритием до концентрации  $\sim 10^{22}$  см<sup>-3</sup>, причем основные результаты получены по  $\beta$ -активности трития методом визуализации в магнитном микроскопе. В распределениях по поверхности титанового слоя (толщиной < 1 мкм) обнаружены неоднородности, но усредненная концентрация в слое глубиной до 10–20 мкм достаточно однородна. Обнаружено: наличие погранслоя (< 1 мкм), прохождение — диффузия трития из титанового слоя в молибден в количестве до 50–70 %, наличие завышенного уровня концентрации трития в молибдене.*

Захват изотопов водорода в пленках, осаждающихся на внутренних поверхностях вакуумной камеры термоядерного реактора, является

одним из механизмов накопления водорода с достижением высокого уровня концентрации в них. При использовании в реакторе в качестве

рабочего продукта дейтерий-тритиевой смеси возникает опасность насыщения пленок тритием и его проникновения в материал вакуумной камеры, являющейся первой стенкой термоядерного реактора. Наиболее опасными в этом смысле являются пленки из материалов с отрицательной энергией активации к растворению: литий, графит, титан, цирконий и др.

Работа посвящена рассмотрению путей и процессов проникновения трития в 1-ю стенку термоядерного реактора на примерах с напылением тонких пленок. Проведены исследования распределения трития в образцах и его диффузии из напыленного слоя титана в виде тонкой пленки толщиной ~7 мкм, насыщенной тритием до концентраций порядка  $10^{22}$  см<sup>-3</sup> в молибден толщиной 0,4–0,5 мм. Основные эксперименты выполнены при использовании магнитного микроскопа [1, 2] с адиабатически инвариантным движением заряженных частиц в магнитном поле, который позволяет получать увеличенные изображения распределения плотности эмиссии заряженных частиц с поверхности исследуемых образцов и работать с малыми выделенными участками поверхности (рис. 1).

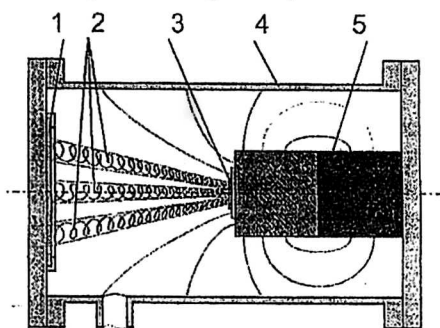


Рис. 1. Принципиальная схема магнитного микроскопа: 1 — фотопленка; 2 — траектории движения заряженных частиц; 3 — источник эмиссии заряженных частиц; 4 — вакуумная камера; 5 — магнитная система

### Экспериментальные результаты

Основные эксперименты с тритием [3] проводились с использованием малоактивных образцов на установке “магнитный микроскоп” методом изучения двумерных распределений β-радиоактивности трития исследуемого поверхностного слоя, получаемых на рентгеновской фотопленке в виде изображений. Для изучения распределения трития по глубине использовались методы поперечного среза и послонного снятия. Используемые методики подробно описаны в работе [4]. В результате проведенных измерений плотности β-электронной эмиссии из поверхностных слоев исследуемых образцов и, таким образом, определения распределения их активности и, соответственно, концентрации трития было обнаружено:

- присутствие трития за пределами титанового слоя в молибдене;
  - проникновение трития из титана в молибден на глубину в несколько микрон;
  - накопление трития в молибдене;
- получены:

- изображение распределения трития в поверхностном слое титана толщиной менее 1 мкм — погранслое (рис. 2);
- изображения распределения трития на различных глубинах, выполненные методом автордиографии с применением фольг (рис. 3);

Рис. 2. Электронное изображение ( $\alpha = 2,4$ ) источника Б. М., негатив

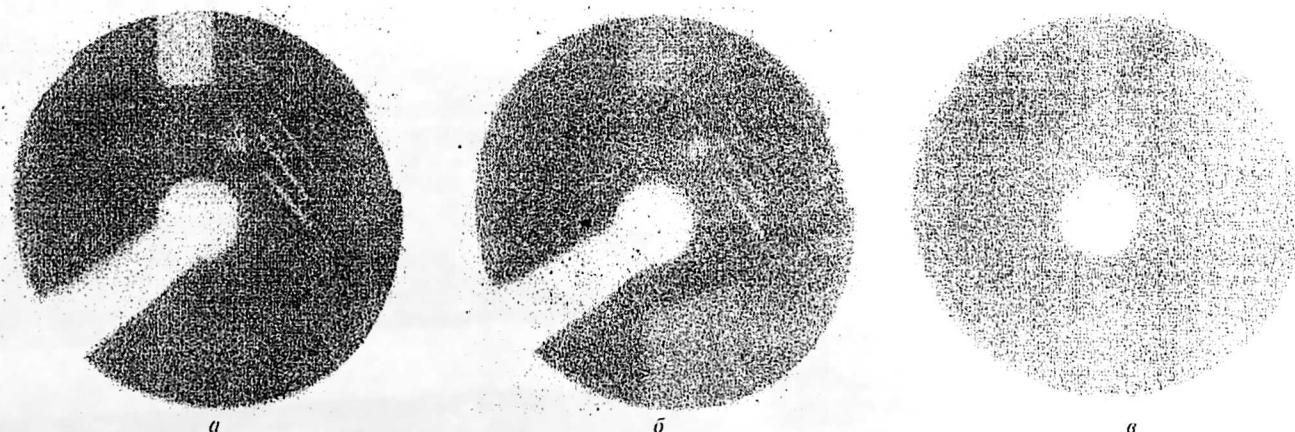
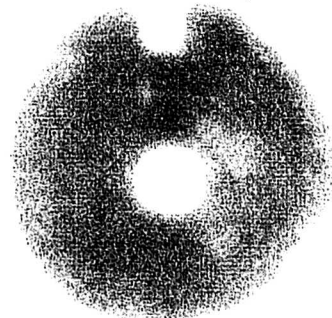


Рис. 3. Изображение источника Б в рентгеновском излучении через: а — полиэтиленовую фольгу толщиной 5 мкм; б — алюминиевую фольгу толщиной 38 мкм; в — медную фольгу толщиной 55 мкм

*a* — распределение трития до глубины 2—4 мкм, *б* — до глубины 5—7 мкм, *в* — до глубины 12—15 мкм;

зависимость распределения трития по глубине методом послойного снятия (рис. 4, 5).

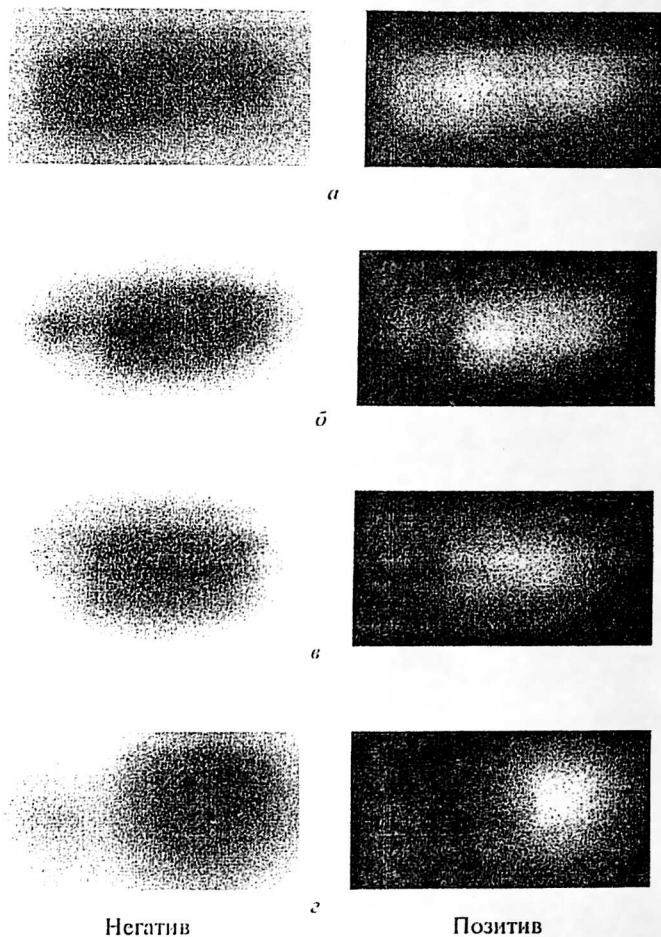


Рис. 4. Результат послойного снятия на фрагменте источника Б:

*a* — изображение исходного состояния фрагмента; *б* — снятие слоя до глубины 6—8 мкм; *в* — снятие слоя до глубины 9—11 мкм; *г* — снятие слоя до глубины 14—15 мкм

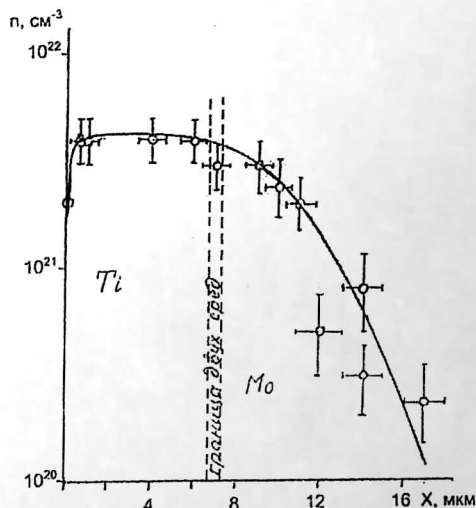


Рис. 5. Распределение трития по глубине источника Б

### Анализ результатов

Экспериментально обнаруженное значительное проникновение трития (до 50—70 % от его количества в титане, при его полном количестве в источнике  $N_T \approx 1,4 \cdot 10^{19}$  атомов и концентрации в титане  $n_T = N_T/Sx \approx 5 \cdot 10^{21} \text{ см}^{-3}$ , где  $S$  — площадь напыленной титаном поверхности образца;  $x$  — толщина титанового слоя  $\sim 7$  мкм) из тонкой пленки титана в молибден на глубину  $\sim 8$  мкм может быть следствием процесса технологического насыщения титанового слоя образца за время  $\sim 1$  ч при температуре  $\sim 400\text{--}500$  °С. Указанные условия определяют широкий диапазон коэффициентов диффузии, вычисляемых по известной формуле

$$D = D_0 \times \exp(-E_M/kT),$$

где  $D_0$  — коэффициент диффузии, соответствующий энергии активации  $E_M = 0$  и зависящий от свойств материала и свойств кристаллической структуры металла.

Известно, что  $D_0 = 0,5 K \lambda^2$ , где величина  $K = 10^{13} - 10^{15}$  — определяется свойствами материала и для молибдена  $K \approx 10^{13} \text{ с}^{-1}$ ,  $\lambda = 0,4\text{--}0,7$  нм — масштаб решетки; поэтому для молибдена  $D_0 \approx 10^{-2} \text{ см}^2/\text{с}$ ,  $E_M = 0,7\text{--}1$  эВ — энергия активации диффузии в молибдене. Таким образом, полный коэффициент диффузии соответствует диапазону:  $D = 10^{-10}\text{--}10^{-9} \text{ см}^2/\text{с}$  и с большим запасом удовлетворяет масштабу диффузии по экспериментальным результатам. Данные для  $D$  приведены без учета влияния первого (на поверхности титана) и второго (разделяющего титан и молибден) погранслоев, которые могут существенно уменьшать темп диффузии. Плотность потока водорода через погранслои определяется, соответственно, параметрами этих зон  $I = D_{п.с.} \times \nabla n$ , где коэффициент диффузии зависит от условий в зоне. Поэтому эффективные коэффициенты диффузии имеют широкий интервал значений  $D = 10^{-9}\text{--}10^{-13} \text{ см}^2/\text{с}$ . Диффузия трития в молибден при насыщении титана сильно зависит от сценария процесса диффузии в титане в процессе его заполнения тритием:

равномерный рост концентрации трития во всем объеме титанового слоя (скорость диффузии много выше, чем скорость поступления трития в титан из газового облака),

или распространение диффузионного фронта (подобие фронта волны горения с учетом того, что теплота активации-растворения  $Q_a^{Ti} < 0$ ) от внешней поверхности титана к границе титан — молибден.

Во втором случае эффективное время диффузии в молибден значительно меньше и для объяснения результатов, получаемых из соотношения для диффузионного фронта  $D = x^2/(1 - \gamma)t$

требует следующего диапазона коэффициентов диффузии:  $D = 10^{-9} - 10^{-12} \text{ см}^2/\text{с}$ .

Причиной накопления трития в молибдене могла явиться его диффузия в металл в стадии сохранения образца в течение 5 лет при температуре  $\sim 20 \text{ }^\circ\text{C}$  по известному закону  $n = n_0 \cdot \exp(-x^2/4Dt)$  для  $\delta$ -функции на границе  $x = 0$ , что удовлетворяет коэффициенту диффузии  $D = x^2/4t \sim 10^{-15} \text{ см}^2/\text{с}$  и энергии активационного перехода  $E_M \approx 0,9 \text{ эВ}$ . Известно [5], что для  $T = 20 \text{ }^\circ\text{C}$  диапазон коэффициента диффузии лежит в интервале  $D = 10^{-15} - 10^{-13} \text{ см}^2/\text{с}$  (и соответственно  $E_M \approx 0,9 \text{ эВ}$ ), что не противоречит экспериментальным результатам.

Оба рассмотренных механизма поступления трития в молибден удовлетворяют современным представлениям о процессах диффузии изотопов водорода [5—7] и оба могут иметь место на 1-й стенке термоядерного реактора. Причем тонкий слой титана в несколько микронов, имеющий отрицательную энергию активации  $Q_a < 0$ , может также моделировать и другие образующиеся тонкие пленки в реакторе, из таких материалов, как ниобий, тантал, цирконий и литий, являющихся перспективными для применения в камере реактора.

Обнаруженный погранслоем на поверхности титана толщиной менее 1 мкм (см. рис. 2) хорошо демонстрирует обилие неоднородностей входного потенциального барьера, активно влияющих на его пропускную способность как при внедрении трития в титан, так и при его уходе из титана наружу.

Наличие границы двух сред титан—молибден может повлиять на количество поступающего трития из титана в молибден. Конкретными причинами в этом погранслое может оказаться наличие:

потенциального барьера — активационного скачка, связанного с разностью энергий активации (теплоты растворения)  $\Delta Q_a > 1 \text{ эВ}$ ;

конкретной разности потенциалов двух разнородных металлов  $\Delta\phi = 0,01 - 0,3 \text{ эВ}$ , которая способствует проникновению положительных ионов в молибден;

неоднородностей — нарушений регулярности кристаллической структуры и связанное с ними образование пустот, пор, вакансий, доменов, ловушек и других дефектов, которые могут явиться транспортными каналами поступления трития в молибден.

Выполненные измерения для рассматриваемого погранслоя Ti — Mo показали отсутствие в области перехода титан—молибден резкого спада — скачка концентрации трития, ожидаемого в связи со скачком в погранслое энергии активации  $\Delta Q_a$ , препятствующего поступлению трития

в молибден. Данный вопрос требует дополнительного изучения, но, тем не менее, из полученных результатов можно уже сделать предположение об активном влиянии контактной разности потенциалов, уменьшающей величину входного барьера в молибден.

Дополнительным результатом исследований явились измерения запаса трития по возбуждаемому  $\beta$ -электронами трития вторичному интегральному (по толщине слоя) рентгеновскому излучению. Результаты были получены методом автордиографии (контактным методом) [2] с дополнением его методом фольг. Была установлена достаточная однородность распределения трития для различных толщин слоев по площади образца (неоднородность не более 10—50 %) вплоть до глубины  $\sim 10 \text{ мкм}$  в молибдене (см. рис. 3). Проведенное по рентгеновскому излучению сравнение активности — концентрации трития двух источников А и Б с различной глубиной проникновения трития в молибден (для А  $\sim 70 \text{ мкм}$ , для Б  $\sim 8 \text{ мкм}$ ) (рис. 6), показало как возможность измерения сравнительного запаса трития, так и глубины его проникновения в молибден (до глубины 10—20 мкм) и, следовательно, возможность разработки метода 3-мерной томографии.

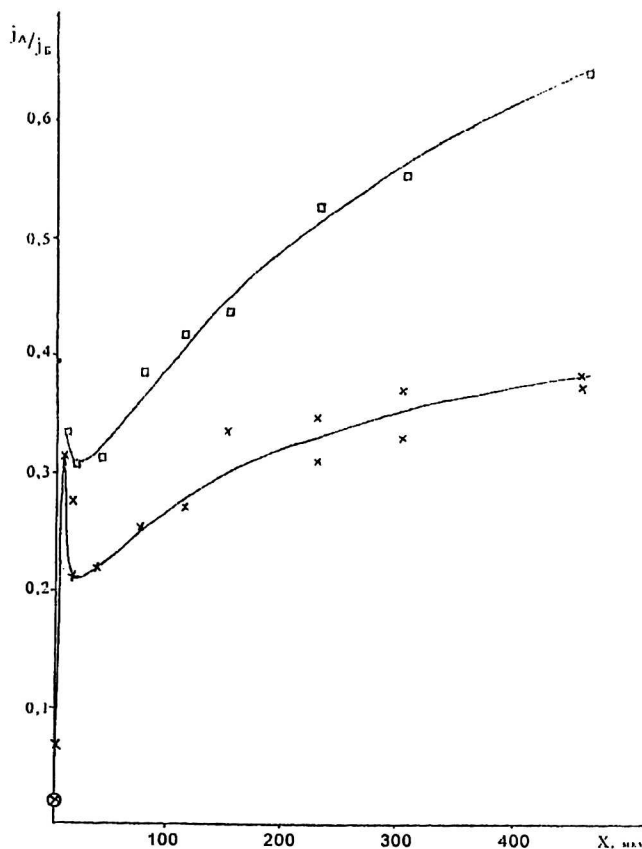


Рис. 6. Отношение плотности рентгеновского излучения источников А и Б в зависимости от толщины алюминиевой фольги:

× — измерения по фотопленке; □ — измерения по прибору "Бета" (счетчик Гейгера); ⊙ — измерения  $\beta$ -излучения

### Выводы

Установлено проникновение трития из тонкого слоя титана в молибден. Его накопление в молибдене для образца со сроком существования 5 лет в масштабе, сравнимом с его количеством в слое титана и составляющем до 40 % от полного запаса в источнике на момент выполнения измерения и с уровнем концентрации, существенно превышает его уровень растворимости в молибдене. Получено:

распределение трития по глубине в титане и молибдене;

трехмерное распределение трития в источнике; визуальное изображение погранслоя на внешней поверхности титана глубиной менее 1 мкм.

Проведен анализ возможных механизмов диффузии и поступления трития в молибден.

Выполненные измерения продемонстрировали возможности магнитного микроскопа (не имеющего аналогов), позволяющего реально увидеть поэтапно весь процесс работы с образцом, а дополнение его методом автордиографии с использованием фольг может существенно повысить разрешение в измерениях распределения трития по глубине без разрушения образцов.

Проведенные экспериментальные исследования позволяют сделать вывод о существенном влиянии тонких пленок, возникающих на по-

верхности металлических элементов вакуумной камеры, на процессы внедрения трития в первую стенку термоядерного реактора. Поэтому изучение защитных слоев, ограничивающих диффузию трития, из различных материалов требует проведения дальнейших исследований.

### Литература

1. Маркин А. И., Утюгов Е. Г., Черковец В. Е. // Способ визуализации на экране изображений исследуемых объектов и устройство для реализации способа // Пат. 2101800 РФ. Класс 6 Н 01 J 37/50 // БИ 1998. № 1. С. 20—27.
2. Беликов В. В., Маркин А. И., Полулях Е. П., Черковец В. Е. Экспериментальное наблюдение и математическое моделирование увеличенных изображений эмитирующих поверхностей в убывающем магнитном поле // Доклады АН, 1999. Т. 367. № 5. С. 610—614.
3. Богословский Л. Ф. и др. Тритий. — М.: Энергониздат, 1985.
4. Азизов Э. А., Маркин А. И., Черковец В. Е. Исследования диффузии и запаса трития в материалах методом магнитной микроскопии // Инженерная физика. 2002. № 1.
5. Писарев А. А. Внедрение ионов изотопов водорода термоядерных энергий в поверхность материалов первой стенки ТЯР // Дисс. на соис. уч. степ. д-ра физ.-мат. наук. — М.: МИФИ, 1988.
6. Reiter F., Forcey K., Gervasini G. A compilation of tritium-material interaction parameters in fusion reactor materials // Joint Research Centre Report EUR 15217 EN Commission of the European Communities, ISPRA, 1993.
7. Solonin M. Materials science problems of blankets in Russian concept of fusion reactor // Proceedings of ICRFM-8, Fusion Reactor Materials VIII. Part A. P. 30—46.

## Research tritium penetration in first wall materials of nuclear fusion reactor with magnetic microscope help

E. A. Azizov, A. I. Markin, N. I. Siromjatnikov, V. E. Cherkovets  
SRC RF TRINITI, Troitsk, Russia

N. N. Riazantseva, V. N. Tebus  
SRC RF VNIINM, Moscow, Russia

*Results of the research installation of tritium distribution and diffusion are presented in this paper. The sample of materials made out of a molibdenium with raising dust layer of titanium. The thickness of titanium layer is ~7 mkm with tritium concentration up to  $10^{21}$ — $10^{22}$  cm<sup>-3</sup>. Measurements of the tritium concentration distribution were done due to its  $\beta$ -activity with help magnetic microscope. The microscope permits to obtain two-dimension distributions of  $\beta$ -electron emission with high sensitivity and resolution as well as to have enlarged images on the film or screen electron-optic converter. The method of autoradiography was used also for registration twodimension distribution secondary X-rays at the film. Measurements has given (in electron rays) the tritium distribution in surface titanium layer with thickness  $\leq 1$  mkm. Heterogeneity of the distribution was discovered. The relative concentration of tritium was changed about three times. There were received (in X-rays) the tritium distribution and its supply in deep layer (10—20 mkm) with good homogeneity (heterogeneity smaller 10 %). It was obtained the tritium concentration distribution as function of deepness using cut of the sample cross-section and layer-disposal. Boundary-layer (<1 mkm) at the external side of the titanium surface was discovered where the titanium concentration is smaller 2—3 times than for depth (and another sample ~10 times). The tritium diffusion from the titanium layer (where it was saturated) to the molibdenium is about 50—70 %. It was shown, that tritium concentration in molibdenium near the boundary-layer titanium—molibdenium is not smaller than in titanium.*