

ПРОНИЦАЕМОСТЬ ИОНОВ ВОДОРОДА ЧЕРЕЗ МЕТАЛЛИЧЕСКИЕ ФОЛЬГИ

А. В. Спицын

*Институт ядерного синтеза РНЦ «Курчатовский институт»,
123182, Россия, Москва, пл. ак. Курчатова 1/1, spitsyn@nfi.kiae.ru*

В термоядерных установках остро стоит проблема удержания трития. В связи с этим представляется очень важным понять закономерности проникновения ионов изотопов водорода через металлические фольги, находящиеся при температуре ниже 600°C .

Проницаемость ниобиевых мембран ионами, молекулами и атомами водорода исследовалась как теоретически, так и экспериментально многими авторами. Результаты многих опытов (см., например, [1, 2]) показывают, что сверхпроницаемость ниобиевых мембран энергичными атомами водорода наблюдается при температурах выше 600°C . Данное явление объясняется авторами этих работ наличием разных поверхностных потенциальных барьеров на лицевой и обратной сторонах мембраны в предположении об однородности материала фольги. В то же время в определенном противоречии с этими утверждениями находятся результаты работы [3], в которой наблюдалась сверхпроницаемость ниобиевой мембраны ионами водорода при облучении плазмой только лицевой поверхности изучаемой фольги. При таком облучении поверхностный потенциальный барьер облучаемой поверхности мембраны должен существенно понизиться по сравнению с обратной стороной и сверхпроницаемость должна исчезнуть.

В работе [4] обнаружено пороговое появление стационарной сверхпроницаемости Nb мембраны толщиной 25 мкм плазменными ионами (после специальной очистки поверхности) при температуре $\sim 400^{\circ}\text{C}$. Проницаемость, отсутствовавшая при 250°C , уже при $350 \div 400^{\circ}\text{C}$ достигала величины 0.25 (отношение потока водорода, прошедшего через мембрану, к падающему на лицевую поверхность потоку в виде ионов и атомов). Было высказано предположение, что столь резкое изменение проницаемости вызвано наличием объемных дефектов.

Экспериментальное оборудование

Исследования мембран толщиной 100 и 25 мкм были проведены на стенде, схема которого приведена на рис. 1. Установка состоит из двух не прогреваемых вакуумных камер из нержавеющей стали, разделенных изучаемой мембраной площадью 7 см^2 . В целях предотвращения перетекания водорода из одной камеры в другую по линиям фороткачки использовались разделенные форвакуумные системы. Для контроля вакуумных условий применялись пять ионизационных преобразователей ПМИ-10 в разных частях камер и патрубка, соединяющего камеры. Состав остаточного газа и газа, прошедшего через мембрану, контролировался двумя массанализаторами, обозначенными на рис. 1 буквой S. В камеру с плазменным источником через пьезоэлектрический натекаль подавался либо аргон, либо водород, предварительно пропущенный через палладиевую мембрану. Для получения ионов водорода использовался источник плазмы с распределенным электронциклотронным резонансным нагревом. Параметры плазменного источника приведены в таблице:

T_e	4,2 эВ
N_e	$1 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-3}$
V	70 л
Диаметр потока на выходе	150 мм
Неоднородность потока во времени	$> 2 \text{ \%}/\text{час}$

Источник позволяет облучать лицевую поверхность мембраны водородной плазмой, а так же ионами аргона с энергией до 300 эВ. Контроль параметров разряда осуществлялся двумя зондами Ленгмюра. Один из зондов, цилиндрический, внесен в центр области, занимаемой плазмой, и служит для определения температуры электронов. Другой, плоский зонд, расположен рядом с изучаемой мембраной и служит для измерения ионного тока на мембрану при плавающем потенциале. Вычисления потока ионов и атомов, падающего на изучаемую мембрану, проводились с помощью компьютерного кода OGRAS, в качестве входных параметров которого использовались данные зондов, а также давление молекулярного водорода в плазменном источнике.

Поток молекулярного водорода, десорбирующийся с обратной стороны мембраны, проходил через измерительную диафрагму с проводимостью $S = 3$ л/с по водороду. Величина потока вычислялась затем из разницы давлений ΔP на разных сторонах диафрагмы по формуле:

$$J = 3.5 \cdot 10^{19} S \cdot \Delta P \text{ мол/сек.}$$

Характерные значения потока молекул водорода, проходящего через диафрагму, составляет $2 \div 3 \cdot 10^{16}$ мол/сек.

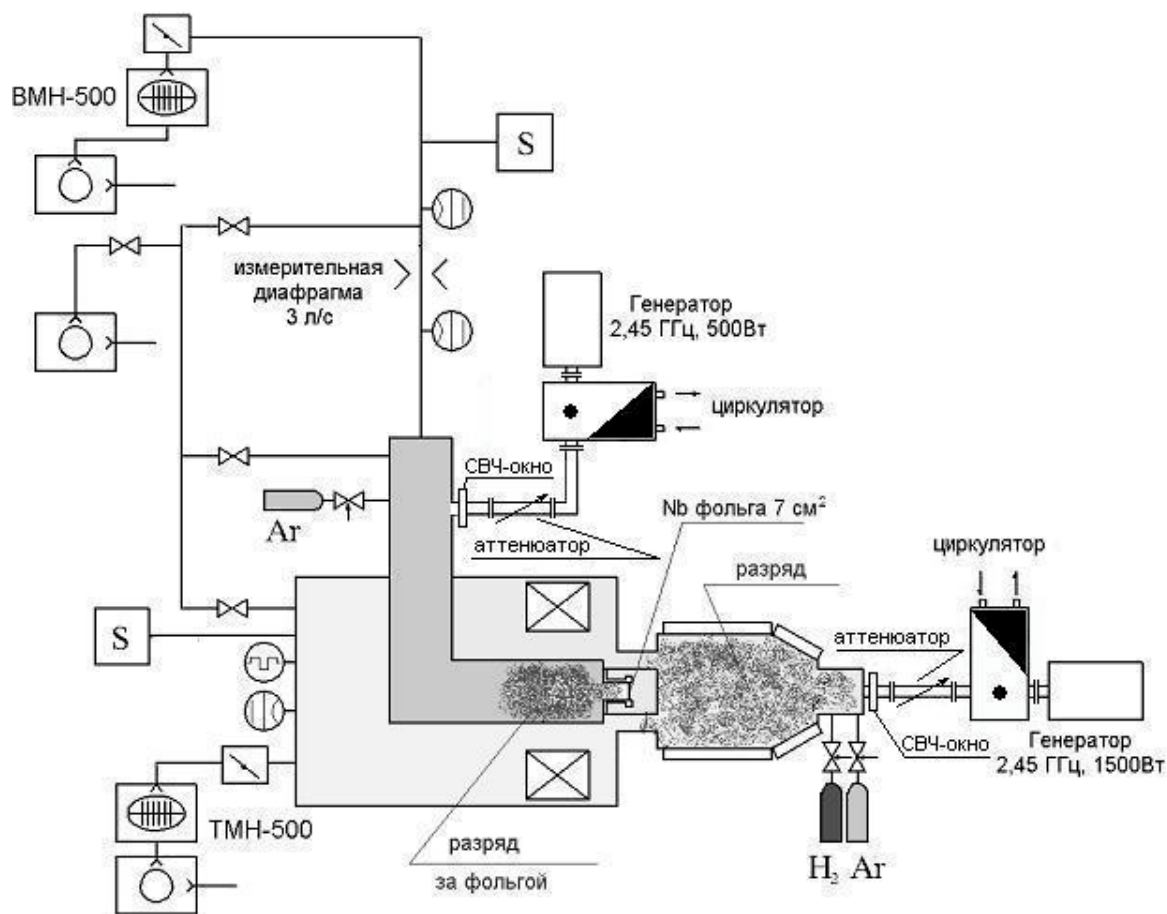


Рис. 1 Схема установки для измерения проницаемости ионов водорода

Эффективность проницаемости η вычислялась как отношение количества протонов, десорбировавшихся с обратной поверхности мембраны в виде молекул, к количеству протонов, принесенных на лицевую поверхность в виде атомов и ионов.

$$\eta = 2 \cdot J / (k \cdot j_{\text{ион}} + j_{\text{ат}}),$$

где $j_{\text{ион}}$ – поток ионов, падающих на фольгу, $j_{\text{ат}}$ – поток атомов, падающих на фольгу, k – среднее количество атомов в ионе, которое определяется с помощью компьютерного кода OGRAS.

Такое определение приводит к занижению значения эффективности проницаемости, так как не учитывает отражение атомов и ионов от поверхности и меньшую, по видимому, проницаемость атомов по сравнению с проницаемостью ионов. Такая методика расчета объясняется тем, что на данный момент не существует работ, в которых определен коэффициент отражения ионов водорода от поверхности ниобия с удовлетворяющей точностью.

Предыдущие эксперименты [4] показали, что чистота поверхности мембраны очень сильно влияет на проницаемость ионов водорода через фольгу. Поэтому возникла необходимость иметь возможность чистить не только лицевую, но и обратную поверхность мембраны. Для этой цели был организован второй безэлектродный СВЧ-разряд в области за мембраной.

В установке получен устойчивый «чистящий» поток ионов аргона $0,5 \text{ мА/см}^2$ на обратную поверхность мембраны, для обеспечения которого применялся специальный цилиндрический вытягивающий электрод. При этом поток ионов на входную поверхность, получаемый из водородной плазмы в режиме исследования проницаемости, достигал 2 мА/см^2 и состоял преимущественно из молекулярных ионов H_3^+ , что было определено на основе численных расчетов и подтверждено измерениями с помощью времяпролетного массанализатора. При необходимости на установке может быть использован вместо водорода дейтерий.

Эксперимент

Была проведена первая серия экспериментов по измерению проницаемости ниобиевой фольги толщиной 25 и 100 мкм. Планом первого этапа эксперимента не предусматривалась очистка ни входной, ни выходной поверхностей мембраны, что позволяло сравнить результаты с результатами, описанными в работе [4], когда производилась очистка только лицевой поверхности мембраны равной толщины. Получено, что при отсутствии регулярных чисток лицевой поверхности величина эффективности проницаемости не превышает 3 % и отсутствует немонотонность зависимости эффективности проницаемости от температуры. Кроме того, проводились измерения зависимости эффективности проницаемости от энергии падающих ионов в диапазоне от 10 до 200 эВ для разных температур. Измерения показали, что при увеличении энергии падающих ионов водорода наблюдается рост эффективности проницаемости в исследуемом диапазоне температур.

Отдельно был проведен контроль герметичности уплотнения фольги, а следовательно, и потока водорода, проникающего не через мембрану, а через уплотнение. Такой поток составил менее $1 \cdot 10^{14}$ мол/сек, что составляет для большинства измерений погрешность менее 1 %.

Таким образом, проведенная работа позволяет сделать следующие выводы:

- Объемные свойства оказывают определяющее влияние на сверхпроницаемость ниобиевых мембран при облучении водородной плазмой.
- Дефектная структура материала и фазовые превращения водорода на дефектах определяют характер немонотонной зависимости проницаемости.
- Влияние фазовых превращений водорода в дефектах подтверждает акустическая диагностика мембран, проведенная в работе [5].
- С уменьшением толщины мембраны эффективность стационарной плазменной проницаемости возрастает обратно пропорционально толщине, что говорит об диффузионно-ограниченной проницаемости.
- Максимальная эффективность проницаемости при температурах до 600°C достигает 25 % для фольги толщиной 0,025 мм.

- Повторяющиеся высокие значения эффективности проницаемости возможно получить только после интенсивной аргоновой чистки обеих сторон фольги, а также после периодических чисток лицевой поверхности мембраны.

Литература:

1. Livshits A., Ohyabu N., Nakamura Y., Bacal M. // Proceedings of the 2nd JAPAN-RUSSIA symposium on interactions of charged particles with solids. Nagoya, 1998. P. 341–355.
2. Лившиц А. И.; Хоткин М. Е.; Яковлев С. В. Пустовойт Ю. М. // Вопросы атомной науки и техники, сер. Термоядерный синтез. 1982. Вып. 1.
3. Bacal M., Livshits A., Notkin M., Solovyov M. et al. First observations and characteristic properties // Proceedings of Japan-CIS Workshops on Interactions of fuel particles with fusion materials. Moscow, 1997. P. 24–40.
4. Skovoroda A. A., Svishchov V. S., Spitsyn A. V., Stolyarov V. L., Pustovoit Yu. M., Borman V. D., Kulikauskas V. S. Shipilin A. M. Plasma-driven superpermeation of hydrogen through Nb membranes: bulk effects // Journal of nuclear materials. 2002. V. 306. P. 232–240.
5. Сковорода А. А., Спицын А. В. Акустическая диагностика изменения механических свойств ниобиевых мембран при нагревании и плазменном облучении // ВАНТ. Москва, 2000. Вып. 1. С. 84.