

УДК 621.039.63

## ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ НА НАКОПЛЕНИЕ ДЕЙТЕРИЯ В НИЗКОАКТИВИРУЕМОЙ СТАЛИ ЭК-181 (РУСФЕР) ПРИ ОБЛУЧЕНИИ ДЕЙТЕРИЕВОЙ ПЛАЗМОЙ

Н.П. Бобырь<sup>1</sup>, А.В. Голубева<sup>1</sup>, Д.И. Черкез<sup>1</sup>, В.С. Ефимов<sup>2</sup>, А.В. Спицын<sup>1</sup>, Ю.М. Гаспарян<sup>2</sup><sup>1</sup>НИИЦ «Курчатовский институт», Москва, Россия<sup>2</sup>Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», Москва, Россия

Исследование поведения изотопов водорода в материалах термоядерных реакторов является одной из актуальных задач для термоядерного синтеза. В работе исследовано накопление дейтерия в образцах ферритно-мартенситной стали со сниженным уровнем наведённой активности под действием нейтронного облучения ЭК-181 (русфер) в процессе облучения низкотемпературной дейтериевой плазмой с энергией ионов 300 эВ при температуре образцов от комнатной до 635 К. Концентрация дейтерия в образцах измерялась методом термодесорбционной спектроскопии, а также методом ядерных реакций, используя реакцию  $D(^3\text{He}, p)^4\text{He}$  при энергии анализирующих ионов  $^3\text{He}^+$  от 0,69 до 4,5 МэВ. Накопление дейтерия в стали ЭК-181 в проведённых экспериментах было очень мало и составило  $10^{-3}$ — $10^{-2}\%$  ат. Наибольшее накопление дейтерия наблюдалось при температуре образца 300—350 К в ходе облучения. Обнаружено резкое уменьшение захваченного дейтерия при температуре облучения выше 400 К. Сравнение данных, полученных методами термодесорбционной спектроскопии и ядерных реакций, показывает, что основная часть дейтерия захватывается в объёме материала, хотя максимум концентрации дейтерия всегда находится вблизи поверхности.

**Ключевые слова:** накопление изотопов водорода, низкоактивируемая сталь, дейтериевая плазма.

## INFLUENCE OF TEMPERATURE ON DEUTERIUM RETENTION IN LOW-ACTIVATION STEEL EK-181 (RUSFER) AT DEUTERIUM PLASMA IRRADIATION

N.P. Bobyr<sup>1</sup>, A.V. Golubeva<sup>1</sup>, D.I. Cherkez<sup>1</sup>, V.S. Efimov<sup>2</sup>, A.V. Spitsyn<sup>1</sup>, Yu.M. Gasparyan<sup>2</sup><sup>1</sup>NRC «Kurchatov Institute», Moscow, Russia<sup>2</sup>National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, Russia

Investigation of hydrogen isotopes behavior in fusion reactor materials is an important task for fusion. In this work deuterium retention in reduced activation ferritic-martensitic steel EK-181 (rusfer) after exposure to low-energy D-plasma with ion energy of 300 eV in the temperature range of RT–635 K was investigated. Deuterium concentration was measured using thermal desorption spectroscopy and nuclear reaction analysis using  $D(^3\text{He}, p)^4\text{He}$  reaction with  $^3\text{He}^+$  energies between 0.69 and 4.5 MeV. The deuterium retention in rusfer was very small (around  $10^{-3}$ — $10^{-2}\%$  at). The maximum deuterium accumulation was observed at exposure temperatures of 300—350 K. Further increase of the exposure temperature led to steep falling down of D accumulation at 400 K. Comparison of the retention measured by thermal desorption spectroscopy and nuclear reaction analysis shows that the deuterium trapped mainly in the bulk of the samples although the maximum concentration of deuterium is always near the surface.

**Key words:** hydrogen isotope retention, low-activation steel, deuterium plasma.

## ВВЕДЕНИЕ

Проблема выбора материалов для вакуумной камеры и защиты вакуумной камеры от воздействия термоядерной плазмы является одной из главных при создании и проектировании термоядерных установок [1, 2]. Одним из перспективных конструкционных материалов для создания термоядерного реактора (ТЯР) является ферритно-мартенситная сталь с низкой активацией в термоядерном спектре нейтронов [3]. Несмотря на то, что сталь редко рассматривается как обращённый к плазме материал из-за высокого коэффициента распыления, низкой теплопроводности и высокого атомного номера входящих в её состав элементов, негативно влияющих на плазму, в последние годы некоторыми авторами обсуждается вопрос использования обращённых к плазме элементов из стали без дополнительной защиты [4—6]. Например, сталь используется в отдельных местах центральной колонны токамака ASDEX-U именно в качестве обращённого к плазме материала [7]. Кроме того, воздействие термоядерной плазмы на сталь возможно в некоторых областях, не защищенных дополнительными элементами, например, в патрубках вакуумной камеры ТЯР, а также при технологических разрядах. Поэтому накопление изотопов водорода в стали в ходе эксплуатации ТЯР будет иметь место как из газовой фазы, так и при облучении плазмой. Накопление трития и дейтерия в материалах реактора может оказать существенное влияние на баланс топлива

термоядерного реактора. Кроме того, один из элементов топлива — тритий является дорогостоящим и радиоактивным элементом.

В России во ВНИИНМ им. А.А. Бочвара создана низкоактивируемая ферритно-мартенситная сталь ЭК-181 (русфер) [8]. Работы, посвящённые взаимодействию изотопов водорода с этим материалом многочисленны [9, 10].

Целью настоящей работы являлось изучение накопления дейтерия в образцах стали ЭК-181 в процессе облучения низкоэнергетичными ионами дейтериевой (D) плазмы.

## ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

В настоящей работе использовались образцы стали ЭК-181 (русфер) с высоким содержанием Cr (12%) производства ВНИИНМ им. А.А. Бочвара размером  $11 \times 8 \times 0,2$  мм. Образцы были отполированы и промыты в ацетоне.

В первую очередь было исследовано влияние повышенных температур на структуру образца. Методом сканирующей электронной микроскопии было обнаружено существенное изменение поверхности образцов при нагреве в вакууме при температуре более 693 К с образованием комплексов  $\text{Cr}_x(\text{C}_y\text{O}_z)$ , которые могут служить центрами захвата водорода в материале [9]. Эти соединения наблюдались на поверхности образцов после их прогрева в виде образований размером 20—100 нм. Элементный состав этих образований был определён методом энергодисперсионного анализа с помощью сканирующего электронного микроскопа.

В ходе настоящего исследования образцы вначале облучались дейтериевой плазмой, затем методом ядерных реакций (МЯР) определялись профили распределения дейтерия в приповерхностной области образца, после чего полный захват дейтерия в образце анализировался методом термодесорбционной спектроскопии (ТДС).

**Облучение дейтериевой плазмой.** Облучение образцов дейтериевой плазмой проводилось на установке ПИМ в НИЦ «Курчатовский институт» [9], оснащённой безэлектродным ЭЦР-источником плазмы, который позволяет получать низкотемпературную плазму с температурой электронов  $T_e \sim 6$  эВ и температурой ионов  $T_i \sim 0,4$  эВ. Состав дейтериевой плазмы определялся с помощью времяпролётного анализатора и представлен молекулярными ионами в соотношении  $\text{D}_3^+ : \text{D}_2^+ : \text{D}^+$  как 7:2:1. Доля быстрых атомов рассчитывалась с использованием математической модели компонентного состава плазмы и составляет 21%. Энергия облучающих образец ионов определяется вытягивающим потенциалом (до  $-300$  В), плотность ионного тока на лицевую поверхность образца составляет до  $10 \text{ А/м}^2$  [9]. Образец стали ЭК-181 устанавливался в охлаждаемый водой держатель, вследствие чего была возможность поддерживать температуру образца постоянной. На образец подавался отрицательный потенциал смещения  $U_{\text{см}} = -300$  В, определяющий энергию ионов, бомбардирующих поверхность. Полное количество ионов, поступающих на мишень образца, определялось по току ионов на образец. Плотность ионного тока для различных образцов составляла  $1\text{—}5 \text{ А/м}^2$  ( $(1,5\text{—}7,5)10^{19} \text{ D/с}\cdot\text{м}^2$ ). Температура каждого образца в процессе облучения поддерживалась постоянной и измерялась хромель-алюмелевой термопарой, приваренной к образцу точёной сваркой.

В ходе экспериментов общая доза облучения ионами дейтерия приходилась на диапазон  $(0,09\text{—}11,55)10^{24} \text{ D/м}^2$  (большинство образцов  $(1,5\text{—}2)10^{24} \text{ D/м}^2$ ). Температура образцов при облучении выбиралась в интервале 290—635 К.

**МЯР.** Профили распределения дейтерия в облучённых образцах определялись методом ядерных реакций (ядерная реакция  $\text{D}({}^3\text{He}, p){}^4\text{He}$ ) с использованием тандемного ускорителя Института физики плазмы, г. Гархинг, Германия. Исследуемый образец облучался пучком анализирующих ионов  ${}^3\text{He}$ , при этом анализировались энергетические спектры  $\alpha$ -частиц и протонов, образованных в ходе реакции. Данный метод позволяет определять концентрацию дейтерия в образце на глубине до десятков микрометров, глубина зависит от состава образца [11]. В данной работе для определения концентрации атомов D энергия анализирующих ионов  ${}^3\text{He}$  варьировалась от 0,69 до 5,5 МэВ (0,69, 1,2, 1,8, 2,4, 3,2, 4,5, 5,5 МэВ). По полученным энергетическим спектрам зарегистрированных протонов для каждой энергии анализирующих ионов проводилось восстановление профиля распределения дейтерия в образце с использованием

кодов SIMNRA и NRADC [12]. Были получены профили распределения дейтерия в стали русфер до глубины 12 мкм.

**ТДС.** Изучение полного захвата дейтерия в образцы, облучённые на установке ПИМ, проводилось на сверхвысоковакуумном ТДС-стенде в НИЯУ МИФИ [13, 14]. Стенд позволяет осуществлять линейный нагрев образцов до температуры 1500 К со скоростью в диапазоне от 0,1 до 20 К/с. Газовыделение при прогреве измеряется квадрупольным масс-спектрометром Pfeiffer Vacuum QME 200 (далее QMS). В большинстве случаев образец подвешивается к вводу движения на приваренной к нему вольфрамовой (W + 5%Re—W + 20%Re) термопаре, которой измеряется температура образца. После каждого эксперимента проводится контрольная калибровка чувствительности QMS по дейтерию с помощью двух прецизионных натекателей и калиброванной дейтериевой течи. Остаточное давление в вакуумной камере стенда составляет менее  $2 \cdot 10^{-9}$  мбар.

При регистрации ТДС исследовавшиеся образцы нагревались до максимальной температуры  $T_{\max} = 1360$  К со скоростью 2 К/с. Регистрировались и анализировались сигналы молекул 18 различных масс, включая массы 3, 4, 19 и 20 — молекулы HD, D<sub>2</sub>, HDO и D<sub>2</sub>O.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

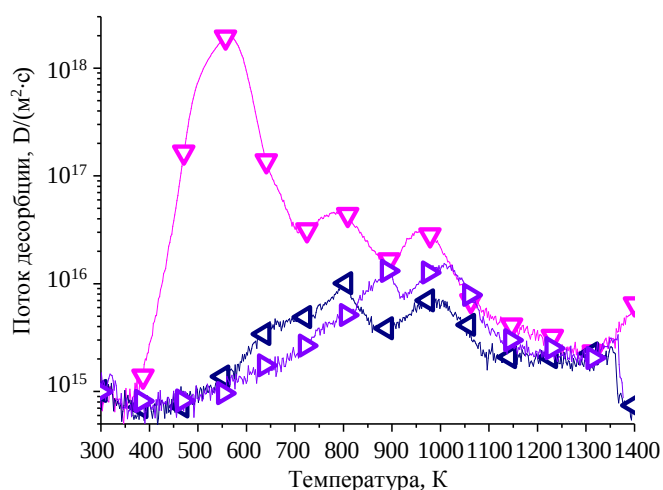


Рис. 1. ТДС-спектры (сигнал 4 а.е.м. молекул D<sub>2</sub>) образцов, облучённых дейтериевой плазмой до одинаковой дозы (1,5—2)·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> при различной температуре: 360 К, 1,89·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (▽); 480 К, 1,54·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (<); 635 К, 1,8·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (▷)

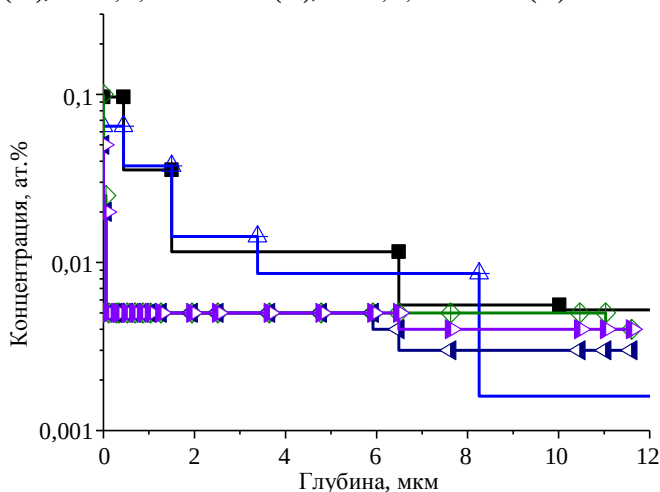


Рис. 2. Профили распределения дейтерия по глубине образцов, облучённых дейтериевой плазмой до доз в диапазоне (0,2—11)·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> при различной температуре: 290 К, 1·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (■); 310 К, 0,2·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (△); 440 К, 11,55·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (◇); 480 К, 1,54·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (<); 635 К, 1,8·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> (▷)

На рис. 1 представлены термодесорбционные спектры образцов стали ЭК-181 (русфер), облучённых дейтериевой плазмой до одинаковой дозы (1,5—2)·10<sup>24</sup> D/м<sup>2</sup> при различных температурах во время облучения. Накопление максимально при комнатной температуре и падает с увеличением температуры облучения. При увеличении температуры, при которой производилось облучение, заметно, как исчезает основной пик термодесорбции и остаются только пики термодесорбции в диапазоне температуры 800—1000 К. Это свидетельствует о том, что ловушки водорода, соответствующие низкотемпературному пику в ТДС и захватывающие большую часть водорода при  $T < 400$  К, перестают захватывать водород. При температуре от 400 К накопление обуславливается высокотемпературными пиками в ТДС, которые отвечают захвату в ловушках с большой энергией связи, например, дислокациям с энергиями связи 0,25—0,31 эВ [15].

На рис. 2 показаны профили распределения дейтерия по глубине образцов, полученные с помощью МЯР. Для образцов, облучённых при близкой к комнатной температуре, концентрация дейтерия постепенно спадает с ростом глубины и составляет 10<sup>-2</sup>—10<sup>-1</sup>% ат. на глубине до 6 мкм.

Для всех образцов, облучённых при повышенных температурах 440—635 К, концентрация максимальна в очень тонком приповерхностном слое (не более 50 нм) и составляет до 0,1% ат. На большей глубине дейтерий распределён практически равномерно и его концентрация составляет 5·10<sup>-3</sup>% ат. Это означает, что большая часть

ловушек в объёме материала не активна и не захватывает водород при этих температурах. Ловушками на поверхности материала могут служить соединения  $\text{Cr}_x(\text{C}_y\text{O}_z)$ , наличие которых на поверхности показано в работе [9].

На рис. 3 приведена зависимость накопления дейтерия от температуры во время облучения, полученная по данным ТДС и МЯР. Метод ТДС даёт большие количества захваченного дейтерия, поскольку этим методом определяется интегральное количество дейтерия в образце, метод МЯР позволяет определить содержание дейтерия лишь в приповерхностном слое глубиной 12 мкм. Данные обоих методов согласуются в характере температурной зависимости. Накопление максимально при комнатной температуре. При температуре выше 400 К накопление значительно снижается, что объясняется тем, что большинство ловушек в стали с малой энергией связи. Из сравнения зависимостей, полученных двумя разными методами, видно, что основная часть дейтерия захватывается на глубине более 12 мкм, так как интегральное накопление во всём образце, определённое методом ТДС, превышает данные МЯР на три порядка.

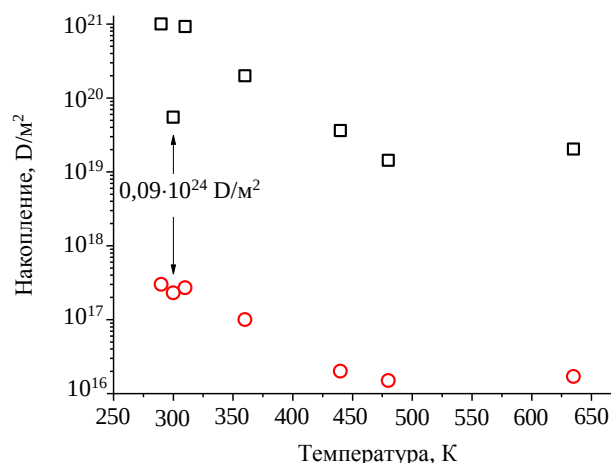


Рис. 3. Накопление дейтерия в образцах, облучённых дейтериевой плазмой до доз в диапазоне  $(0,09\text{—}11)10^{24} \text{ D/m}^2$ , по данным ТДС (во всём образце) и МЯР (на глубине 12 мкм):  $\square$  — накопление ТДС;  $\circ$  — накопление МЯР

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Несмотря на присутствие в стали ЭК-181 (русфер) элементов с отрицательной теплотой растворения водорода, способных накапливать значительное количество дейтерия (ванадий и тантал), интегральное накопление в стали как при облучении низкоэнергетичными ионами плазмы, так и при выдержке в газе [10] не превышает  $5 \cdot 10^{-3}\%$  ат. При этом накопление заметно снижается, если температура образца во время облучения выше 400 К. Термодесорбционный спектр дейтерия из образцов стали ЭК-181 (русфер) можно условно разделить на две области: основной пик при 500—550 К и множество мелких пиков (как правило, на порядок меньше по амплитуде основного пика) в диапазоне 700—1200 К. Максимальное накопление дейтерия происходит при температурах облучения 290—360 К и обусловлено низкотемпературным пиком в ТДС. С увеличением температуры образца во время облучения накопление резко уменьшается. Принимая во внимание данные МЯР, можно сделать предположение, что основной захват происходит в ловушках с большой энергией связи.

Данные по накоплению, полученные методом ТДС, превышают данные МЯР, что означает, что основная часть дейтерия захватывается в объёме материала, хотя максимум концентрации всегда находится вблизи поверхности.

Авторы благодарят коллектив отдела Е2М Института физики плазмы общества Макса Планка (г. Гархинг, Германия) за предоставленную возможность проведения анализа методом ядерных реакций.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Federici G., Skinner C.H., Brooks J.N., Coad J.P., Grisolia C., Haasz A.A., Hassanein A., Philipps V., Pitcher C.S., Roth J., Wampler W.R., Whyte D.G. — Nucl. Fusion, 2001, vol. 41, p. 1967.
2. Tobita K., Nishio S., Enoda M., Sato M., Isono T., Sakurai S., Nakamura H., Sato S., Suzuki S., Ando M., Ezato K., Hayashi T., Hayashi T., Hirose T., Inoue T., Kawamura Y., Koizumi N., Kudo Y., Kurihara R., Kuroda T., Matsukawa M., Mouri K., Nakamura Y., Nishi M., Nomoto Y., Ohmori J., Oyama N., Sakamoto K., Suzuki T., Takechi M., Tanigawa H., Tsuchiya K., Tsuru D. — Fusion Eng. Des., 2006, vol. 81, p. 1151.
3. Аленина М.В., Колотов В.П., Иванов Л.И., Платов Ю.М., Товтин В.И., Филяев И.Н. — ВАНТ. Сер. Материаловедение и новые материалы, 2005, т. 65, № 2, с. 55—61.
4. Roth J., Sugiyama K., Alimov V., Höschen T., Baldwin M., Doerner R. — J. Nucl. Mater., 2014, vol. 454, p. 1—6.
5. Sugiyama K., Roth J., Alimov V.Kh., Schmid K., Balden M., Elgeti S., Koch F., Höschen T., Baldwin M.J., Doerner R.P., Maier H., Jacob W. — J. Nucl. Mater., 2014 (in press) (doi:10.1016/j.jnucmat.2014.11.044).

6. Lisgo S.W., Börner P., Kukushkin A., Pitts R.A., Polevoi A., Reiter D., — J. Nucl. Mater., 2011, vol. 415, p. 965.
7. Zammuto I., Giannone L., Houben A., Herrmann A., Kallenbach A. — Fusion Eng. and Des. (in press) (doi:10.1016/j.fusengdes.2015.01.048).
8. Chernov V.M., Leontyeva-Smirnova M.V., Potapenko M.M. et al. — Nucl. Fusion, 2007, vol. 47, p. 1.
9. Golubeva A.V., Bobyr N.P., Cherkez D.I., Spitsyn A.V., Mayer M., Gasparyan Yu.M., Efimov V.S., Chernov V.M., Leontyeva-Smirnova M.V. — J. Nucl. Mater., 2013, vol. 438, p. 983.
10. Spitsyn A.V., Golubeva A.V., Bobyr N.P., Khripunov B.I., Cherkez D.I., Petrov V.B., Mayer M., Ogorodnikova O.V., Alimov V.Kh., Klimov N.S., Putrik A., Chernov V.M., Leontyeva-Smirnova M.V., Gasparyan Yu.M., Efimov V.S. — J. Nucl. Mater., 2014, vol. 455, p. 561.
11. Alimov V.Kh., Roth J., Mayer M. — J. Nucl. Mater., 2005, vol. 337—339, p. 619.
12. Alimov V.Kh., Mayer M., Roth J. — Nucl. Instr. and Meth. B, 2005, vol. 234, p. 169.
13. Русинов А.А., Гаспарян Ю.М., Перелыгин С.Ф., Писарев А.А., Степанов С.О., Трифонов Н.Н. — Приборы и техника эксперимента, 2009, № 6, с. 116.
14. Русинов А.А., Гаспарян Ю.М., Трифонов Н.Н., Писарев А.А., Степанов С.О. — В сб.: Сборник научных трудов научной сессии МИФИ. — М., 2007, т. 4, с. 117; Rusinov A. et al. — In: Proc. MEPhI Scientific Session, 2007, vol. 4, с. 117.
15. Pressoyre G.M. — Met. Trans. A, 1979, vol. 10A, p. 1571.



Николай Павлович Бобырь, м.н.с.; НИЦ «Курчатовский институт», 123182 Москва, пл. Академика Курчатова 1, Россия



Анна Владимировна Голубева, с.н.с., к.ф.-м.н.; НИЦ «Курчатовский институт», 123182 Москва, пл. Академика Курчатова 1, Россия  
Golubeva\_AV@nrcki.ru



Дмитрий Ильич Черкез, инженер; НИЦ «Курчатовский институт», 123182 Москва, пл. Академика Курчатова 1, Россия



Виталий Сергеевич Ефимов, аспирант; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», 115409 Москва, Каширское шоссе 31, Россия



Александр Викторович Спицын, начальник лаборатории ЦФХТ, к.ф.-м.н.; НИЦ «Курчатовский институт», 123182 Москва, пл. Академика Курчатова 1, Россия  
spitsyn\_av@nrcki.ru



Юрий Микаэлович Гаспарян, к.ф.-м.н., доцент; Национальный исследовательский ядерный университет «МИФИ», 115409 Москва, Каширское шоссе 31, Россия  
YMGasparyan@mephi.ru

Статья поступила в редакцию 1 октября 2014 г.  
Вопросы атомной науки и техники.  
Сер. Термоядерный синтез, 2015, т. 38, вып. 2, с. 38—42.