

МЕТОД ФОНОННОЙ МОДУЛЯЦИИ СТРУКТУРЫ КРИОГЕННОГО ВОДОРОДНОГО ТОПЛИВА В МИШЕНЯХ ДЛЯ ИТС

И. В. Александрова¹, Е. Р. Корешева^{1,2}, И. Е. Осипов³

В статье рассматривается вопрос о возможности объемной гомогенизации структуры криогенного водородного топлива в лазерных термоядерных мишенях. Представлены результаты большого цикла экспериментальных исследований по низкотемпературной ($T = 4.2$ K) фононной модуляции структуры твердых слоев водорода с различным орто-пара составом и его влиянием на скорость процесса гомогенизации.

Ключевые слова: инерциальный термоядерный синтез (ИТС), мишени для ИТС, гомогенизация топлива в мишени методом фононной модуляции структуры твердых водородных слоев.

Введение. Один из основных вопросов, стоящих на сегодняшний день в исследованиях по ИТС, это влияние микроструктуры твердого водородного топлива на качество криогенного слоя и сохранение этого качества вплоть до момента облучения мишени импульсом мощного лазерного излучения [1]. Требования на качество слоя сформулированы в работе [2]: отклонения от сферичности и концентричности должны составлять не более 1%, локальные неоднородности на поверхности топливного слоя (шероховатость) не должны превышать 1 мкм. В настоящее время в мировой практике разработано несколько подходов к формированию качественного криогенного слоя топлива. Получаемые в экспериментах слои представляют собой поликристаллическую структуру, уровень дисперсности которой зависит от применяемого метода формирования, а точнее от скорости охлаждения конденсированного топлива.

¹ ФИАН, 119991 Россия, Москва, Ленинский проспект, д. 53; e-mail: ivaaleks@gmail.com.

² Национальный исследовательский ядерный университет "МИФИ", 115409 Россия, Москва, Каширское шоссе, д. 31; e-mail: elena.koresheva@gmail.com.

³ ЦЭ Интер РАО ЕЭС, 119019 Россия, Москва, Филипповский пер., д. 13; e-mail: igosipov@mail.ru.

Традиционные методы формирования базируются на достаточно медленном охлаждении топлива ($q \sim 3 \cdot 10^{-5}$ К/с), что позволяет получить криогенный слой типа “монокристалл” с гладкой внутренней поверхностью. Однако такие слои обладают высокой чувствительностью к вариации внешних тепловых и механических нагрузок [2], что неизбежно ведет к структурной релаксации топлива (конверсии в крупнокристаллическую структуру) и росту шероховатости слоя сверх допустимых норм в процессе доставки мишени в фокус мощной лазерной установки или реактора.

Получение термостойких криогенных слоев связано с переходом к инновационному free-standing target (FST) методу [1], действующему за счет реализации высоких скоростей охлаждения $q_{\text{FST}} = 1 - 50$ К/с. При наличии высокоплавких добавок к топливу это позволяет сформировать ультрадисперсные слои, обладающие повышенной механической и тепловой устойчивостью, что минимизирует риск потери качества слоя при доставке мишени в лазерный фокус.

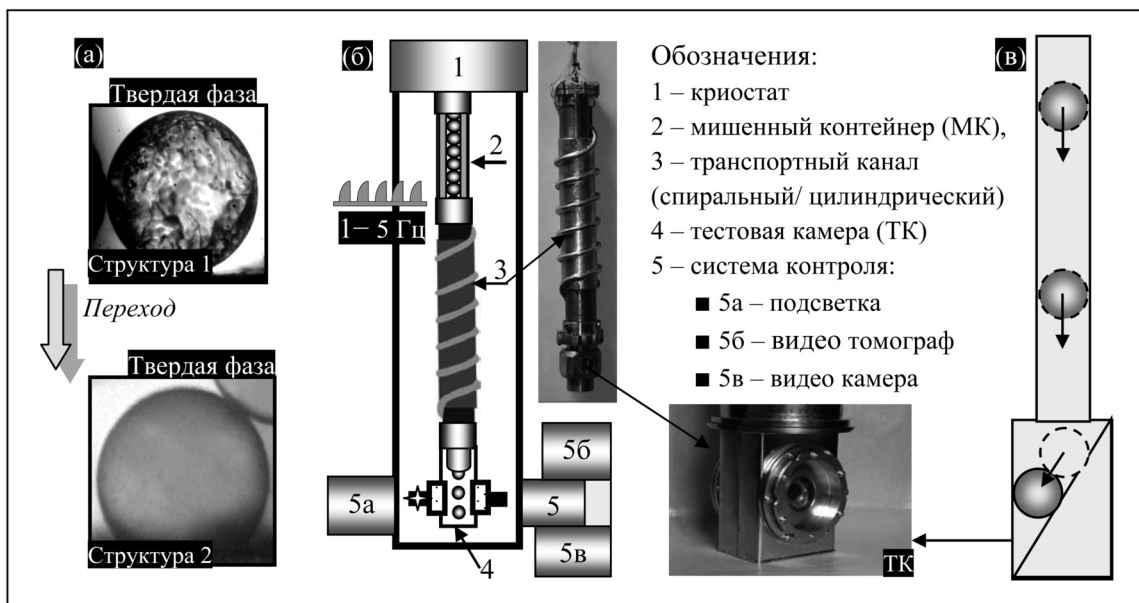


Рис. 1: Новое направление в развитии методов получения качественных криогенных слоев основано на идее гомогенизации твердой структуры водородного топлива (а), (б) схема установки, (в) схема подачи мишени в тест-камеру для проведения экспериментов и ее размещение на стеклянном клине.

В настоящей работе нас будет интересовать вопрос, относящийся к традиционным методам, т.е. к возможности гомогенизации уже имеющейся крупнокристаллической структуры изотопов водорода. Рис. 1(а) наглядно иллюстрирует идею метода. Схема

установки показана на рис. 1((б),(в)). Стеклообразные оболочки, находящиеся в МК, заполнялись газообразным водородом до давления P_f , а затем по транспортному каналу, охлаждаемому теплообменным (т/о) гелием, инжигировались в ТК с температурой стенок $T = 4.2$ К. Вымораживание топлива осуществлялось при $q \sim 0.02$ К/с $< q_{\text{FST}}$, чтобы получить крупнокристаллическую структуру слоя. Изучался следующий вопрос: можно ли конвертировать этот твердый непрозрачный криогенный слой в прозрачный (рис. 1(а)). Другими словами, речь идет о возможности развития структурно-чувствительных методов для объемной гомогенизации структуры твердого водородного топлива.

Гомогенизация крупнокристаллической структуры нормального водорода, сформированной внутри полый оболочки. Первые результаты по фононной модуляции структуры (ФМС) при различных значениях давления заполнения P_f (40 – 100 атм) представлены на рис. 2. Принцип был продемонстрирован для твердого слоя из нормального водорода $n\text{-H}_2$, имеющего изначально крупнокристаллическую структуру. Орто-пара состав $n\text{-H}_2$ соответствует 75% молекул орто-водорода и 25% молекул пара-водорода. Температура перехода равнялась $T = 4.2$ К. Толщина слоя W варьировалась от 3.9 до 25 мкм. Низкочастотная (1 – 5 Гц) последовательность импульсов звуковых волн возбуждалась в верхней части транспортного канала, который служил цилиндрическим или спиральным волноводом для передачи возмущения на мишень, расположенную в ТК (рис. 1(б) и 1(в)). По мере распространения исходной звуковой волны ее параметры непосредственно в зоне расположения мишени становятся иными, что зависит от типа канала и способа фиксации мишени в ТК (плоская подложка или клин). Передаточная функция достигает оптимума в ТК, которая работает как концентратор звуковых волн. Криогенная мишень в ТК находилась под воздействием (нагрузкой) в течение 30–60 с, затем нагрузка снималась. В результате наблюдалась видимая трансформация крупнокристаллической фазы $n\text{-H}_2$ в прозрачный криогенный слой при $T = 4.2$ К (гомогенизация структуры слоя). Характерные времена переходов в этой серии экспериментов составили от 150 с до 600 с.

Сразу отметим, что в результате процесса гомогенизации (прежде всего, в зависимости от длительности и частоты нагрузки) не всегда получались полностью прозрачные криогенные слои: процесс либо действительно полностью заканчивался (визуально фиксированное время перехода $\Delta t \leq 10$ мин, рис. 2 и 3(а)), либо образовывались структуры, представленные на рис. 3((б),(в)) (большие времена перехода $\Delta t > 30$ мин). Подчеркнем, что серия экспериментов на рис. 2(а) и рис. 3 была выполнена с одной и той

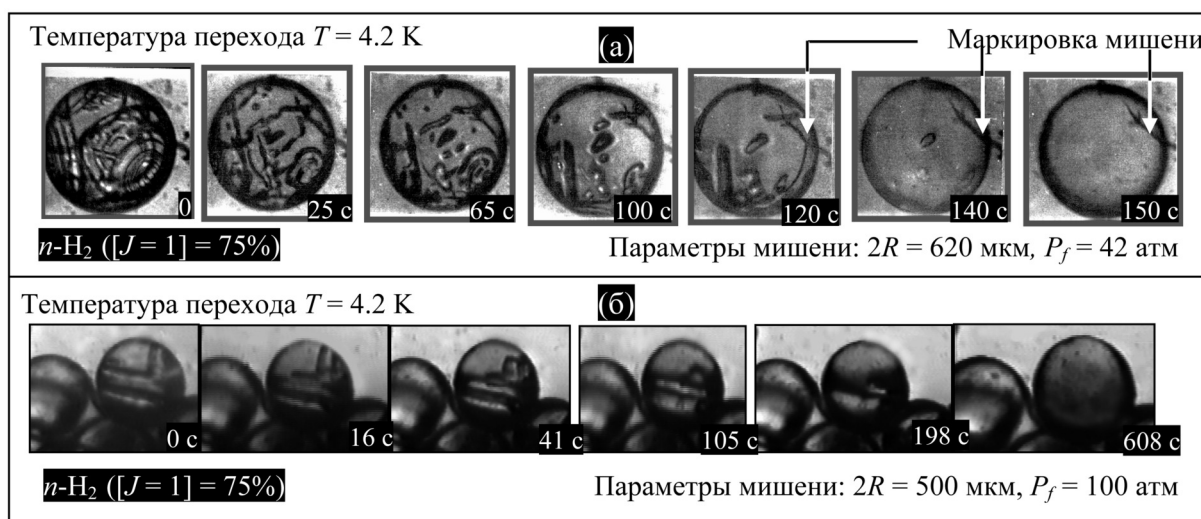


Рис. 2: Первые эксперименты по фоновой модуляции структуры твердого водорода ($n\text{-H}_2$).

же мишенью (маркирована специальной меткой), чтобы исключить влияние факторов, связанных с размещением мишени в ТК (концентратор звуковых волн). Последующий нагрев структур на рис. 3((б),(в)) никогда не приводил к возврату исходной структуры, в то время как прозрачный $n\text{-H}_2$ слой (рис. 3(а)) иногда конвертировал в крупнокристаллическую фазу в интервале температур $4.2\text{K} < T < 0.5T_{tp}$ ($T_{tp} = 13.96\text{ K}$ – тройная точка для $n\text{-H}_2$). Процесс имел резкий характер (время конверсии менее секунды) и всегда происходил при вполне определенной температуре из указанного диапазона. Какое же объяснение можно предложить в этом случае? Наблюдавшаяся в некоторых экспериментах обратная конверсия при нагреве мишени, скорее всего, обусловлена тем, что фиксируемое лишь визуально образование прозрачного криогенного слоя не совпадает с истинным моментом окончания фазового перехода, и, следовательно, получаемая прозрачная структура должна еще “выдерживаться” некоторое время при температуре перехода. Определение времени выдержки требует проведения дальнейших исследований по изучению устойчивости получаемых прозрачных структур под действием внешних теплопритоков при одновременной вариации параметров самого метода ФМС.

Следующий важный шаг – понять, в какой мере процесс гомогенизации структуры слоя захватывает поверхность слоя, т.е. может ли метод ФМС работать как технология сглаживания шероховатости свободной поверхности топлива? Действительно, метод ФМС является одним из перспективных кандидатов, так как видимо воздействует именно на кристаллические ячейки и границы зерен (рис. 2). Мы провели дополнитель-

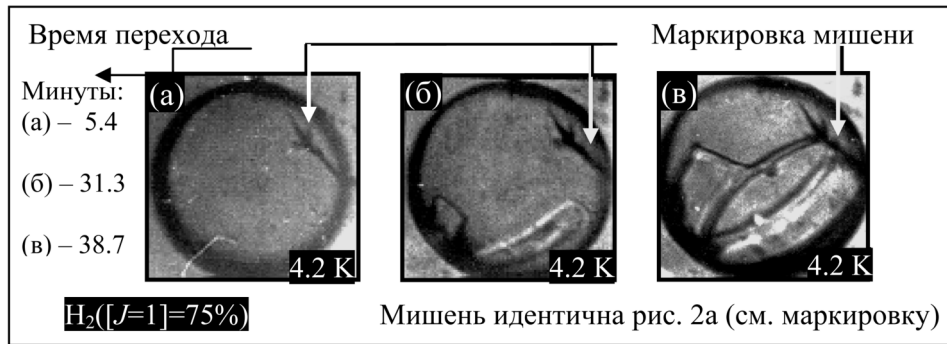


Рис. 3: Результирующие криогенные слои после применения метода ФМС и последующего нагрева.

ные эксперименты с криогенными слоями $n\text{-H}_2$ различной толщины: $W = 12.5$ мкм, $\Delta t = 440$ с (рис. 4), $W < 1$ мкм, $\Delta t = 420$ с (рис. 5).

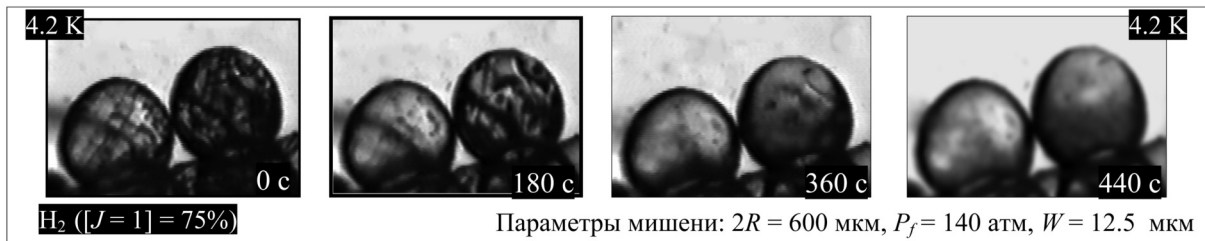


Рис. 4: Метод ФМС делает непрозрачные слои прозрачными.

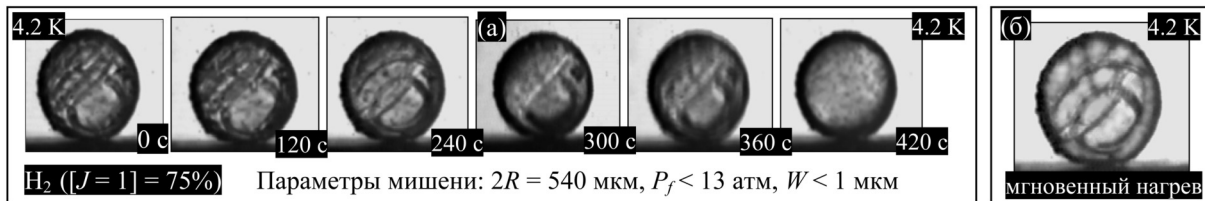


Рис. 5: Метод ФМС как технология сглаживания внутренней поверхности криогенного слоя.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что процесс гомогенизации структуры слоя имеет объемный характер (наблюдается для различных толщин криогенного слоя), и поэтому обеспечивает возможность перехода к топливным слоям значительной толщины, что является определяющим фактором для мишеней реакторного класса. Отметим, что при этом захватывается и поверхность криогенного слоя, что позволяет

сглаживать его шероховатость. Напомним, что требования на качество слоя формулируются довольно жестко: шероховатость слоя не должна превышать 1 мкм. Согласно результатам рис. 5, метод ФМС работает с локальными неоднородностями еще меньшего размера, т.е. менее 1 мкм, так как толщина самого криогенного слоя $W < 1$ мкм. При этом легко показать, что процесс инициируется именно в области непрозрачности слоя, поскольку мгновенный нагрев мишени до температуры $T = 4.25$ К (рис. 5(б)) сразу же после формирования полностью прозрачного слоя возвращает крупнокристаллическую структуру исходного нулевого кадра (рис. 5(а), время 0 с). То обстоятельство, что времена перехода довольно близки (рис. 4 и 5), связано с особенностями формирования тонкого пристеночного слоя, что непосредственно влияет на величину поверхностной энергии системы “оболочка–слой”.

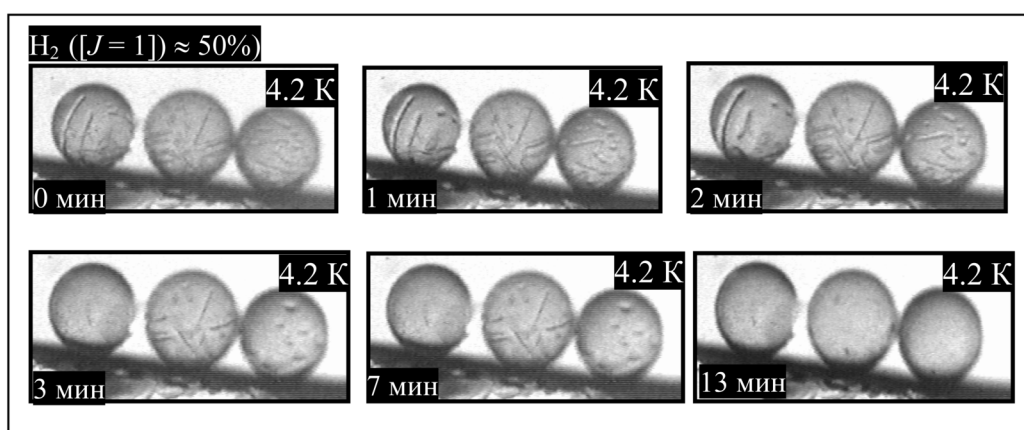


Рис. 6: Чем меньше $J = 1$ концентрация, тем больше время гомогенизации.

Еще несколько серий экспериментов было посвящено изучению влияния исходного орто-пара состава водорода на скорость процесса гомогенизации. При этом в каждой серии изучалось сразу несколько оболочек, чтобы реализовать некоторое различие в параметрах звуковой волны непосредственно в зоне расположения мишеней. В этих экспериментах мы использовали водород с концентрацией спиновых модификаций с $[J = 1] \sim 50\%$, и получили следующие результаты: (1) время гомогенизации сильно зависит от исходного орто-пара состава, увеличиваясь при снижении $[J = 1]$ -концентрации (сравните рис. 6, где $J = 1$ составляет $\sim 50\%$ и $t = 13$ мин) с рис. 4, где $J = 1$ составляет $\sim 75\%$ и $t = 440$ с = 7.3 мин), (2) существует верхний порог по температуре $T = 4.2$ К, выше которого процесс гомогенизации слоя прекращается (рис. 7). Таким образом, в экспериментах обнаружена корреляция между временем гомогенизации с одной стороны и орто-пара составом водорода и температурой перехода, с другой.

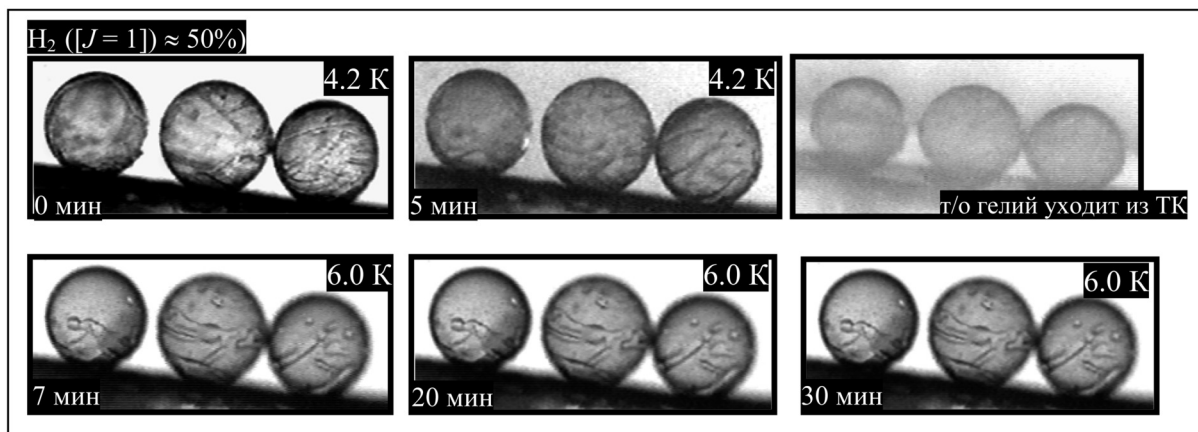


Рис. 7: Нагрев мишени выше 4.2 К останавливает процесс гомогенизации структуры слоя.

Это имеет первостепенное значение для анализа возможных механизмов, объясняющих наблюдаемый эффект.

Обсуждение полученных результатов. В данном разделе мы рассмотрим возможные механизмы, объясняющие гомогенизацию крупнокристаллической структуры $n\text{-H}_2$. Это позволит планировать новые серии экспериментов, имеющих целью расширение области применения низкотемпературной гомогенизации твердой структуры водорода на его изотопы и смеси, что может стать основой технологии массового производства качественных криогенных мишеней, устойчивых к действию внешних теплопритоков, неизбежно возникающих в процессе доставки мишени с топливом в камеру реактора ИТС.

Эффекты самоорганизации в неравновесных системах. Топливное вещество внутри мишени находится в микроколичествах, и его свойства могут существенно отличаться от свойств массивного образца. Так, например, эффекты самоорганизации хорошо известны для сверхтяжелой воды (модифицированная вода II с плотностью $\rho = 1.4 \text{ г/см}^3$, полученной в узких кварцевых капиллярах ($\varnothing < 100 \text{ мкм}$) с образованием несвойственной обычной воде кольцевой структуры [3]. Кроме того, различие в энергиях структур водорода, соответствующих гексагональной плотной упаковке (г.п.у.) и гранецентрированной кубической (г.ц.к.) экспоненциально мало в силу обнаруженного значительного гистерезиса при переходе из одной структуры в другую [4], что, кстати, и свидетельствует о фазовом превращении первого рода. Это означает, что довольно легко образуются неравновесные системы, например, с помощью низкочастотной после-

довательности импульсов звуковых волн (метод ФМС). Существование обеих структур при $T = 4.2$ К наблюдалось в ряде исследований, обсуждаемых в работе [4]. Таким образом, есть некоторые основания полагать, что эффекты самоорганизации [5] могут играть определенную роль в обсуждаемом явлении низкотемпературной гомогенизации твердого слоя $n\text{-H}_2$, и, как следствие, привести к формированию морфологически новой модификации водорода. Поскольку прямых измерений структуры не проводилось, то мы назвали (с точки зрения решения задач ИТС) полученную гомогенную фазу $n\text{-H}_2$ α -структурой, что является терминологически удобным для последующего анализа ее устойчивости при нагреве мишени. С другой стороны, учитывая уникальные свойства изотопов водорода, нельзя исключить возможности и других объяснений наблюдаемого эффекта. Некоторые из них будут представлены в следующем разделе.

Низкотемпературные фазовые переходы, обусловленные ориентационным упорядочением ядерных спинов. Наблюдаемое явление можно отнести к структурно-чувствительным свойствам молекулярных кристаллов. Твердый водород (H_2) и дейтерий (D_2) представляют интерес еще и потому, что в них проявляются значительные квантовые свойства и влияние спина ядер на поведение вещества. Так, например, в одной из первых работ [6], в которой исследовалось ориентационное упорядочение молекул и его влияние на структуру и свойства дислокаций, показано, что механические свойства $n\text{-H}_2$ {75% молекул ортоводорода ($o\text{-H}_2$) и 25% молекул параводорода ($p\text{-H}_2$)} и $p\text{-H}_2$ при $T < 7$ К заметно различаются. Известно [4], что с понижением температуры в водороде и дейтерии при больших концентрациях спиновых модификаций с $J = 1$ (например, ортоводород) возрастает роль квадрупольных взаимодействий, и происходят существенные изменения как в характере вращательного движения молекул, так и в кристаллической структуре. Ортомолекулы в кристаллической решетке последовательно испытывают заторможенное вращение, затем осцилляции, и, наконец, ориентационное упорядочение, которое сопровождается фазовым переходом. Аналогичные явления происходят и в нормальном водороде ($n\text{-H}_2$) в диапазоне температур 1.2 К–4.2 К. Отметим, что в пара-водороде ($p\text{-H}_2$) вплоть до температуры 1 К не наблюдается ни ориентационное упорядочение, ни фазовый переход [4].

Указанные особенности поведения обусловлены тем, что водород ($T_b = 20.39$ К) и дейтерий ($T_b = 23.66$ К) относятся к веществам с низкой температурой кипения T_b (н.у.), т.е., по сути дела, к квантовым кристаллам, в которых смещение атомов из положения равновесия, вызванное нулевыми колебаниями, составляет значительную часть расстояния между ближайшими соседями. Поведение квантовых кристаллов под

действием нагрузки имеет качественно иной характер. Отмечено [4], что механическое воздействие, приводящее к деформации образца, стимулирует появление низкотемпературной г.ц.к.-фазы водорода. Таким образом, если наши предположения о характере наблюдаемого явления верны, тогда в основе его лежит фазовый переход между г.п.у.- и г.ц.к.-структурами, который и обнаруживает столь яркое различие в свойствах ориентационно-упорядоченной и неупорядоченной фаз. Следует отметить, что когда одно и то же вещество может иметь несколько кристаллических модификаций, то переход из одной в другую может сильно влиять на его свойства. Достаточно упомянуть полиморфные превращения “белое” олово \rightarrow “серое” олово (порошок), графит \rightarrow алмаз и т.п. Поэтому указанный фазовый переход вполне может служить основанием для наблюдаемой гомогенизации $n\text{-H}_2$.

Сделаем несколько замечаний относительно тепловой устойчивости, т.е. отсутствия структурной релаксации получаемых модификаций нормального водорода при нагреве мишени. Ранее отмечалось, что в некоторых экспериментах наблюдалась обратная конверсия прозрачного $n\text{-H}_2$ слоя в крупнокристаллическую структуру при нагреве мишени в диапазоне температур $\Delta T : 4.2 \text{ K} < T < 0.5T_{tp}$. При этом сам факт обратной конверсии не вызывает удивления, так как происходит естественный возврат к высокотемпературной г.п.у.-структуре. А вот результат стабильного существования гомогенной α -структуры во всем диапазоне температур, т.е. вплоть до момента ее плавления, действительно требует объяснения, или хотя бы попытки такового.

Отметим, что упорядоченные фазы водорода и дейтерия имеют пространственную группу симметрии $Ra\bar{3}$ [4]. Это означает, что г.ц.к.-решетка состоит из четырех физически эквивалентных подрешеток, в каждой из которых все молекулы ориентированы вдоль одной из диагоналей куба. Следует также подчеркнуть, что фазовый переход осуществляется только после процесса упорядочения, и таким образом, новая решетка как бы “подстраивается” под заранее выделенное направление. Напомним, что каким бы способом ни выращивался монокристалл, физической основой процесса является задание единственного направления роста и подавление всех других. Иными словами, еще до «начала» собственно фазового перехода, естественно возникающая ориентация служит той доминантой, которая способна повлиять на уровень дисперсности формируемой α -структуры из твердого слоя нормального водорода.

Однако мы должны учесть, что явления упорядочения могут приводить к аномально высоким значениям теплоемкости, т.е. к появлению так называемых λ -точек [7]. Наличие λ -аномалии в теплоемкости водорода с содержанием ортомодификации 66% и 74%

зарегистрировано в серии работ [4]. Таким образом, хотя факт образования монокристаллического слоя в результате перехода г.п.у. \rightarrow г.ц.к. структур не доказан прямыми измерениями, тем не менее, результаты проведенных исследований и анализ литературы делают его очень вероятным.

Примечание. В работе [7] обнаружено, что анизотропия скорости звука присуща именно г.п.у.-фазам изотопов водорода, и для H_2 и D_2 составляет около 20% (продольный звук) и 33% (поперечный звук). Поскольку в соответствии с теорией Дебая, решеточная теплопроводность прямо пропорциональна величине скорости звука, то это является причиной сферически асимметричной сублимации топливного вещества, что приводит к росту шероховатости слоя и его разнотолщинности при доставке первоначально идеальной мишени в фокус лазерной установки. Поэтому важно подчеркнуть, что в результате гомогенизации слоя мы конвертируем анизотропную гексагональную г.п.у.-структуру в изотропную кубическую г.ц.к.-структуру, т.е. снимаем запрет на использование монокристаллического слоя в экспериментах по ИТС.

В заключение сделаем несколько важных замечаний, касающихся перспективы дальнейшего развития исследований по гомогенизации твердой структуры водородного топлива. Начнем с того, что каждой кристаллической модификации отвечает вполне определенная область на равновесной фазовой диаграмме. Однако именно для кристаллов способность существовать не в свойственных данной структуре границах является практически правилом. Яркий пример – алмаз и графит, красная и желтая сера и др., что объясняется трудностью преобразования одного порядка в другой в условиях крайней тесноты расположения молекул. Кроме того, электронографическими методами [4] установлено наличие г.ц.к.-решетки в микроколичествах водорода и дейтерия (т.е. в мишени), при тех температурах и орто-пара составе, при которых массивные образцы обладают г.п.у.-решеткой. Это означает, что можно не только получить низкотемпературную фазу, но и стабилизировать ее свойства во всем диапазоне существования твердого криогенного слоя.

Резюме: направление дальнейших исследований. Полученные экспериментальные результаты свидетельствуют о возможности получения изотопов водорода с большим многообразием структурных типов, чем это отражено на соответствующих фазовых диаграммах. Основной вывод, который можно сделать на данном этапе исследований, заключается в том, что существует принципиальная возможность формирования криогенных слоев с заданной структурой топлива для обеспечения требуемой устойчивости слоя применительно к задачам ИТС.

Для практической реализации этой перспективы необходимо провести детальные исследования времени отклика исходной структуры слоя на внешнее воздействие (т.е. времени гомогенизации Δt), а также изучить возможность стабилизации получаемой новой структуры. Прежде всего, необходимо учесть влияние следующих факторов: 1) зависимость величины Δt от вещества криогенного слоя $\{n\text{-H}_2, p\text{-H}_2, n\text{-D}_2, p\text{-D}_2, n\text{-T}_2, DT\text{-смесь (50\% молекул DT, 25\% n-D}_2 \text{ и 25\% n-T}_2)\}$, а также материала оболочки, 2) зависимость величины Δt от температуры или ее модуляции (эффективность процесса растет с ее понижением), 3) зависимость от характера и длительности нагрузки (планируется изучить не только механическое воздействие, но и применение ориентирующего, а возможно и поляризующего магнитного поля).

Полученные результаты позволят сделать окончательный вывод о природе наблюдаемого явления, а также определить, какой вид воздействия является прямым, а какой опосредованным, т.е. с достоверностью указать наиболее оптимальный стимулирующий фактор.

Л И Т Е Р А Т У Р А

- [1] И.В. Александрова, Е. Р. Корешева, О. Н. Крохин, И. Е. Осипов, Вопросы Атомной Науки и Техники, сер. Термоядерный синтез **38**(1), 57 (2015).
- [2] S. O. Kucheev and A. V. Hamza, J. Appl. Phys. **108**, 091101 (2010).
- [3] Б. В. Дерягин, Н. В. Чураев, *Новые свойства жидкостей* (М., Наука, 1971).
- [4] P. C. Souers, *Hydrogen properties for fusion energy* (Lawrence Livermore National Laboratory, University of California Press, 1986).
- [5] G. Nicolis and I. Prigogine, *Self-organization in non-equilibrium systems* (Wiley-Interscience, New York, N.Y. 1977).
- [6] Д. Н. Большуткин, Ю. И. Степенко, Л. И. Индан, Труды ФТИАНУ **10**, 86 (1970).
- [7] Л. Д. Ландау, *Сборник трудов*. Том 1 (М., Наука, 1969).
- [8] R. Wanner and H. Meyer, Phys. Lett., **41A**, 189 (1972)

Поступила в редакцию 1 сентября 2015 г.