

МИНИСТЕРСТВО ЭНЕРГЕТИКИ РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН
Республиканское государственное предприятие на праве хозяйственного ведения
«НАЦИОНАЛЬНЫЙ ЯДЕРНЫЙ ЦЕНТР РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН»
Филиал «Институт атомной энергии»
(Филиал ИАЭ РГП НЯЦ РК)

УДК 539.21: 620.193: 621.039.5

Бочков Вадим Сергеевич

**ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ И ВЫХОДА ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ ИЗ
СВИНЦОВО-ЛИТИЕВОЙ ЭВТЕКТИКИ Li15.7Pb В УСЛОВИЯХ
НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ**

Работа, представленная на конференцию-конкурс НИОКР
молодых ученых и специалистов
Национального ядерного центра Республики Казахстан

(прикладные исследования)

Руководитель: Кульсартов Т.В.,
к.ф.-м.н., ведущий научный сотрудник
отдела материаловедческих испытаний,
Национальный ядерный центр РК

г. Курчатов, 2020

АВТОР

Бочков Вадим Сергеевич,

инженер лаборатории внутриканальных испытаний
Филиала «Институт Атомной Энергии» РГП «НЯЦ РК»,
1993 года рождения,
образование высшее (ФГАОУ ВО НИ «Томский Политехнический Университет»
2011-2017 г.)
специальность – «Химическая технология материалов современной энергетики»,
квалификация по диплому – инженер,
работает в ИАЭ НЯЦ РК с 2017 г.,
общий стаж работы 3 года

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Главный научный сотрудник
НЯЦ РК, д.ф.-м.н., профессор


подпись, дата

И.Л. Тажибаева

Ведущий научный сотрудник
отдела материаловедческих
испытаний, к.ф.-м.н.


подпись, дата

Т.В. Кульсартов

Научный сотрудник
лаборатории внутриканальных
испытаний


подпись, дата

Ж.А. Заурбекова

БОЧКОВ В.С.

ИССЛЕДОВАНИЕ ГЕНЕРАЦИИ И ВЫХОДА ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ ИЗ СВИНЦОВО-ЛИТИЕВОЙ ЭВТЕКТИКИ Li15.7Pb В УСЛОВИЯХ НЕЙТРОННОГО ОБЛУЧЕНИЯ

Работа, представляемая на конференцию-конкурс НИОКР молодых ученых и специалистов
Национального ядерного центра Республики Казахстан
от Филиала «ИАЭ» РГП «НЯЦ РК»

071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, 10,
тел. (7-722-51) 3-31-25, (9)2-01 (вн.)
факс (7-722-51) 3-31-25
e-mail: bochkovv@nnc.kz

РЕФЕРАТ

Конкурсная работа содержит: 21 страниц, 15 рисунков, 2 таблицы, 10 источников.

**ТЕРМОЯДЕРНЫЕ РЕАКТОРЫ, СВИНЦОВО-ЛИТИЕВАЯ ЭВТЕКТИКА, БЛАНКЕТ,
ТРИТИЙ, ГЕЛИЙ**

Актуальность: В качестве топлива термоядерных реакторов планируется использовать радиоактивный изотоп водорода – тритий. Одной из наиболее важных задач, стоящих перед конструкторами, является обеспечение устойчивого воспроизводства трития внутри термоядерной установки. Воспроизводство трития должно быть максимально эффективным, а количество его утечек в окружающую среду должно не превышать предельно допустимых значений. Генерацию трития в реакторах термоядерного синтеза наиболее эффективно осуществить благодаря ядерной реакции тепловых нейтронов с атомами лития. В настоящее время существует большое количество работ, посвящённых проблеме наработки и выделения трития из литиевых материалов. Многочисленные исследования показали, что процессы выделения трития из материала зависят от многих факторов, таких как: температура материала, скорость генерации трития в материале, состояние поверхности материала, фазовый состав материала.

Свинцово-литиевая эвтектика Li15.7Pb является принципиально новым материалом для производства трития (с процентным содержанием атомов лития 15,7 % и 84,3 % свинца). Предполагается, что данное процентное соотношение свинца к литию значительно повысит выделение трития из эвтектики в условиях нейтронного излучения. Соответственно, для подтверждения данного предположения возникает необходимость в проведении реакторных исследований по генерации и выделению гелия и трития из нового материала свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb .

Объектом исследования: является свинцово-литиевая эвтектика с содержанием лития 15,7 % и свинца 84,3 %.

Цель работы: оценка эффективности и определение температурных режимов выхода трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb в условиях нейтронного облучения.

Задачи исследования:

- аналитический обзор существующих экспериментальных данных по способам извлечения трития из жидкометаллических литий-содержащих материалов ТЯР;
- разработка и создание ампульного устройства;
- очистка и заливка исследуемого образца в экспериментальную ячейку;
- подготовка и проведение реакторных экспериментов;
- обработка и анализ полученных результатов.

Методика исследований: аналитический обзор зарубежной и отечественной

научно-технической литературы, конструирование и инженерное проектирование, метод масс-спектрометрической регистрации выделяющихся газов, реакторный эксперимент.

Результаты работ: разработано и создано экспериментальное ампульное устройство; проведены реакторные эксперименты по исследованию выделения трития и гелия из образца свинцово-литиевой эвтектики при различных температурах исследуемого образца, определены параметры генерации и выделения трития из образца материала свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb.

Научная новизна: заключается в получении новых экспериментальных данных о процессах генерации и выделения трития и гелия из нового перспективного литийсодержащего материала свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb.

Практическая ценность: состоит в возможности оценить реальную эффективность наработки трития в жидкометаллических бланкетах ТЯР со свинцово-литиевой эвтектикой Li15.7Pb.

Личный вклад автора: участие во всех этапах работы: создание ампульного устройства; подготовка и проведении экспериментов; обработка и анализ полученных результатов.

ОБОЗНАЧЕНИЯ И СОКРАЩЕНИЯ

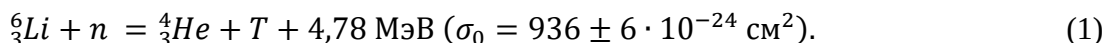
ДЕМО	– (DEMOstration Power Plant) демонстрационная энергетическая установка;
ИТЭР	– международный термоядерный экспериментальный реактор;
ИВГ.1М	– исследовательский водоохлаждаемый, гетерогенный ядерный реактор;
ТОКАМАК	– тороидальная камера с магнитными катушками;
ТЯР	– термоядерный реактор;
ХА	– хромель-алюмель (термопара);
АУ	– ампульное устройство;
ФКЭ	– физический канал экспериментальный
ЛИАНА	– экспериментальный реакторный стенд;

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	7
ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ	8
1. Аналитический обзор.....	8
1.1 Эксперименты по исследованию выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики.....	8
2. Экспериментальная часть.....	10
2.1. Исследуемый образец	10
2.2. Источник нейтронного излучения.....	10
2.3. Экспериментальный стенд	12
2.4. Экспериментальное ампульное устройство.....	13
2.5. Подготовка и заливка образца свинцово-литиевой эвтектики	13
3. Реакторные эксперименты	16
3.1. Эксперименты по выделению трития и гелия без подачи дейтерия	16
3.1.1. Результаты экспериментов по выделению трития и гелия без подачи дейтерия.....	17
3.2. Эксперименты по выделению трития и гелия с подачей дейтерия	19
3.2.1. Результаты экспериментов по выделению трития и гелия с подачей дейтерия.....	19
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	21
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	22
ПРИЛОЖЕНИЕ А Список публикаций по теме.....	23

ВВЕДЕНИЕ

В термоядерных энергетических реакторах первого поколения в качестве топлива будут использоваться изотопы водорода – дейтерий и тритий. Запасов трития в природе не существует, поэтому для его наработки конструкция термоядерного реактора предполагает специальное устройство – бридерный бланкет, содержащий литий и литий содержащие материалы. Под действием нейтронного облучения в литийсодержащем материале будет происходить ядерная реакция с образованием трития:



Свинцово-литиевая эвтектика рассматривается, как один из наиболее привлекательных материалов для использования в качестве источника трития в бланкете ТЯР [1]. Основными преимуществами, выделяющими эвтектику среди остальных кандидатных литийсодержащих материалов бридера являются:

- 1) низкая температура плавления (235 °С);
- 2) высокий коэффициент воспроизводства трития;
- 3) более высокая теплопроводность (по сравнению с керамическими материалами);
- 4) возможность использовать эвтектику как теплоноситель;
- 5) низкая химическая активность при взаимодействии с кислородом и водой;
- 6) высокая стойкость к радиационному повреждению;
- 7) возможность извлечения наработанного трития за пределами бланкета;
- 8) возможность регулировать скорость размножения нейтронов, посредством изменения концентрации лития-6 в материале бридера [2].

В настоящий момент свинцово-литиевая эвтектика является многообещающим кандидатом для использования в качестве материала бланкета термоядерного реактора ДЕМО по следующим причинам: высокая степень наработки трития, низкая химическая активность с водой, воздухом и бетоном и стойкость к радиационному повреждению [3].

В процессе работы реактора в бланкете будет нарабатываться тритий, который далее будет извлечен и использован в виде топлива.

Параметры взаимодействия трития со свинцово-литиевой эвтектикой изучены довольно слабо. Основные опубликованные работы по исследованию процессов взаимодействия изотопов водорода, в том числе трития, со свинцово-литиевой эвтектикой, как правило, были проведены с образцами, содержащими 17 % лития. Однако, согласно работе, даже малое отклонение в концентрации лития по отношению к свинцу приводит к значительным изменениям свойств эвтектики по отношению к изотопам водорода. Было установлено, что активность лития, а значит и растворимость трития в эвтектике, резко падает при самом незначительном уменьшении содержания лития. Именно поэтому возникает необходимость в проведении исследований по генерации и выделению трития из свинцово-литиевой эвтектики с содержанием лития 15,7 % непосредственно в условиях нейтронного облучения.

В данной работе приведено описание и результаты эксперимента по исследованию процессов выделения трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb при облучении на реакторе ИВГ.1М.

ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

1. Аналитический обзор

Первые экспериментальные исследования параметров взаимодействия изотопов водорода со свинцово-литиевой эвтектикой в условиях реакторного облучения начали проводиться в девяностых годах двадцатого века. Далее приведен краткий обзор экспериментов по исследованию выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики в условиях реакторного облучения, проведенных в различных исследовательских центрах мира.

1.1 Эксперименты по исследованию выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики

Начиная с 1991 года в Японии на исследовательском реакторе на быстрых нейтронах «YAYOI», расположенном в Токийском университете, проводились эксперименты по определению основных параметров взаимодействия изотопов водорода со свинцово-литиевой эвтектикой Li17Pb83 в рамках программы TREXMAN (Tritium Release Experiment from Molten Li-Pb alloy under Neutron Irradiation) [4].

Экспериментальная установка состояла из трех основных частей: система подачи транспортирующего газа, внутриреакторное облучательное устройство и система контроля и извлечения трития. Для повышения степени отражения нейтронов в экспериментах облучательная ампула окружалась полиэтиленовыми элементами. Поток тепловых нейтронов реактора в эксперименте был равен $10^8 - 10^9 \text{ см}^{-2}$, уровень воспроизводства трития 4,7 Бк/с на 1 г лития. Диапазон исследуемых температур образца от 300 °С до 700 °С. Образованный тритий уносился транспортирующим газом (гелий с различным содержанием водорода). Концентрация трития в транспортирующем газе измерялась непрерывно двумя ионизационными камерами (ИК). Растворимые компоненты трития (HTO , T_2O) улавливались первым водяным барботером, а нерастворимые компоненты (HT , T_2), после превращения в тритированную воду в катализаторе CuO , вторым.

Было определено, что более 99,9 % трития, образованного в эвтектике под действием облучения при температурах от 400 °С до 700 °С входило в состав водонерастворимых соединений HT и T_2 для всех композиций транспортирующего газа. Количество выделяющегося трития прямо пропорционально зависит от парциального давления водорода в транспортирующем газе и от температуры транспортирующего газа.

В работе [5] представлены исследования выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики в рамках программы LIBRETTO (LIquid Breeder Experiment with Tritium Transport Option) были направлены на изучение параметров выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики в условиях, приближенных к условиям термоядерных реакторов. Облучение образцов проводилось на высокопоточном реакторе HFR в г. Петтен, Голландия [5]. Всего с 1987 года проведено более 9 серий экспериментов в рамках данной программы. Результаты первой серии приведена ниже.

Облучение проводилось в специальной сборке с четырьмя независимыми каналами. В каждый канал загружалось ампульное устройство с образцом, снабженное термопарами и набором датчиков нейтронного потока. Для продувки объема ампул и отвода выделяющегося трития устройство оснащено двумя капиллярными трубками. В качестве продувочного газа во всех экспериментах использовался гелий с содержанием водорода 0,1 %. Диаметр капсулы составлял 15 мм, толщина стенки – 0,5 мм. Материал АУ – нержавеющая сталь типа AISI 316 L. Масса загружаемой эвтектики 120 г. Всего для первой серии экспериментов было изготовлено 3 капсулы: 2 запаянных (для регистрации трития, мигрирующего сквозь стенки), и одна открытого типа для измерения трития в газовой фазе над образцом. Эксперимент по облучению длился 68 сут (45 сут на 307 °С и 24 сут при

температуре от 327 °С до 407 °С). Степень выгорания лития составляла от 1,07 % до 1,14 %. Скорость наработки трития составляла от $1,27 \cdot 10^5$ Бк/(мин·г) до $1,37 \cdot 10^5$ Бк/(мин·г).

В работе [6] представлены результаты экспериментов по выделению трития, проведенных на реакторе YAYOI в Токийском университете.

Для генерации трития использовали ядерную реакцию лития с нейтронами со скоростью проницаемости сквозь стальную трубу толщиной 1 мм 10^{-5} м/с.

При этом все компоненты, контактирующие с LiPb изготовлены из аустенитной нержавеющей стали марки SS 316 и SS 304, за исключением проницаемой трубки, размеры которой составляли 150 мм в длину и площадь поперечного сечения $6 \cdot 10^{-3}$ м².

Экспериментальное устройство размещалось в тепловой колонне в реакторе YAYOI. Реактор эксплуатировался на мощности 2 кВт для генерации нейтронного потока до 10^9 см⁻²·с. Во время испытания температура холодного и горячего контуров поддерживалась на уровне 500 °С и 530 °С соответственно. Продувочный газ представлял собой смесь 1 % H₂+He либо 0,1 % H₂+He. Для контроля за продувочными газами были установлены две ионизационные камеры, подключенные к горячему и холодному контуру. Согласно полученным данным изменение высвобождения трития пропорционально изменению мощности реактора и происходит быстрее с увеличением коэффициента массопередачи. Согласно полученным данным в ходе эксперимента установлено, что временное запаздывание нейтронов обусловлено влиянием концентрации водорода в продувочном газе. Установлено, что эффект циркуляции PbLi ограничен окислительно-восстановительными процессами, протекающими на поверхности, стали, а также коэффициентом диффузии и растворимости водорода. При этом образование оксидного слоя на поверхности проницаемой трубки или ее утончение влияет на поведение высвобождения трития. Полученные результаты хорошо согласуются с предыдущими работами в этой области.

В работе [7] рассмотрено поведение ферритно-мартенситной стали EUROFER97 под действием нейтронного потока в среде Pb-16Li, которая имитирует рабочие условия параметров тестового бланкета HCLL, встроенного в исследовательский реактор LVR 15. Эксперимент проводился на эвтектической расплаве Pb-16Li, который был изготовлен из лития с чистотой 99,99 мас.% и свинца с чистотой 99,9 мас.% в молибденовом тигле. Стальные пластины из стали EUROFER97 толщиной 24 мм, используемые для подготовки образцов, были подвергнуты термообработке: упрочнение при 980 °С в течение 27 мин в атмосфере воздуха, закалка при 760 °С в течение 90 мин в атмосфере воздуха. Для облучения была спроектирована установка и проведены три серии экспериментов с целью проверки достижения заданных температур в диапазоне от 500 °С до 520 °С и от 300 °С до 320 °С.

Обнаруженный эффект коррозии под действием Pb-16Li приводит к растворению стальной матрицы. На открытой поверхности EUROFER97 наблюдалось два реакционных слоя. Первый сплошной поверхностный слой, характеризующийся неравномерной толщиной, второй подповерхностный слой, свидетельствующий о том, что растворение металлической матрицы происходит вдоль границ мартенситной фазы. Проведенные исследования показали, что механизм коррозии в жидком расплаве – это объемное растворение стали.

Таким образом в проведенном аналитическом обзоре по исследованиям взаимодействия изотопов водорода со свинцово-литиевой эвтектикой литературном обзоре представлено описание основных характеристик свинцово-литиевой эвтектики и экспериментов по исследованию выделения трития из нее в условиях реакторного облучения.

2. Экспериментальная часть

2.1. Исследуемый образец

Образец свинцово-литиевой эвтектики содержит в атомных долях 15,7 % лития и 84,3 % свинца. Обогащение по изотопу Li^6 составляет 7,52 % (природное). Масса исследуемого образца 84,9390 гр.

Атомная масса $\text{Pb}^{15.7}\text{Li}$ с природным изотопным составом лития равна 173,16 а.е.м. Ниже в таблице 1 приведен ряд характеристик образца $\text{Li}^{15.7}\text{Pb}$, которые были получены на оборудовании ИАЭ НЯЦ РК.

Таблица 1 – Характеристики образца $\text{Li}^{15.7}\text{Pb}$

Параметр	Плотность при температуре 20 °С, г/см ³	Плотность при температуре 250 °С, г/см ³	Плотность при температуре 350 °С, г/см ³	Температура плавления, °С	Содержание водорода в образце, ppm
Значение	9,56 ± 0,01	9,36 ± 0,01	9,26 ± 0,01	234,2 ± 0,5	~ 10*
Примечание – * Измерение содержания водорода в образце определялось по данным газовой выделения в условиях нагрева образца в вакууме до температуры 1100 °С (нагревались образцы массой 0,01 г и 0,1 г).					

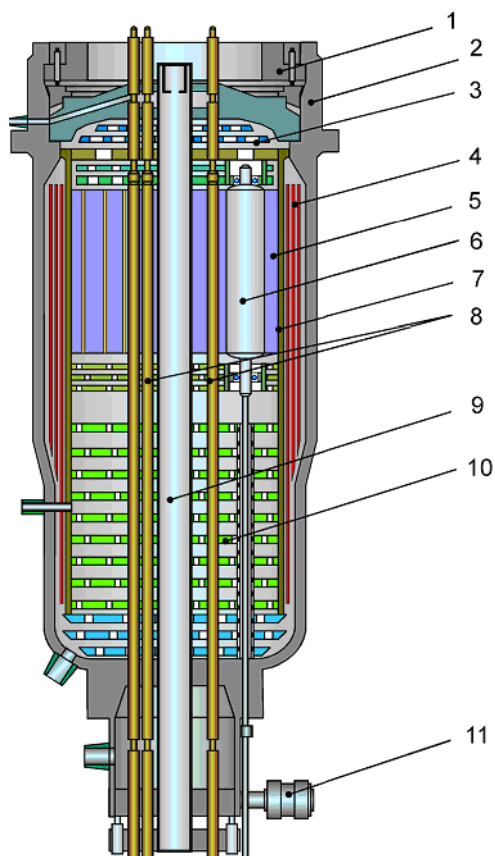
2.2. Источник нейтронного излучения

В качестве источников нейтронного потока использовался водоохлаждаемый, гетерогенный, стационарный ядерный реактор ИВГ.1М [8].

Реактор ИВГ.1М представляет собой водо-водяной реактор корпусного типа на тепловых нейтронах с бериллиевым отражателем и водяным замедлителем и теплоносителем. На рисунке 1 представлена схема вертикального разреза ИР ИВГ.1М.

В центральной части реактора установлен корпус экспериментального физического канала (ФКЭ). Корпус ФКЭ используется в качестве канала для размещения экспериментального облучательного устройства.

Корпус ФКЭ имеет внутренний диаметр 68 мм, ограничивающий поперечные размеры облучательных устройств. Диаметр верхнего отверстия ФКЭ, предназначенного для загрузки облучательных устройств составляет 60 мм. Расстояние от верхнего торца ФКЭ до центра активной зоны составляет 1710 мм. Реактор не имеет горизонтальных экспериментальных каналов для вывода пучка нейтронов. Единственный вертикальный сухой канал также не оснащен специальными устройствами для вывода нейтронного пучка за пределы реактора и предназначен для проведения внутриреакторных экспериментальных исследований. Основные технические характеристики реактора ИВГ.1М приведены ниже в таблице 2.



1 – крышка реактора; 2 – корпус реактора; 3 – верхний экран; 4 – боковой экран;
 5 – отражатель; 6 – регулирующий барабан (РБ); 7 – центральный канал;
 8 – технологические каналы; 9 – физический канал экспериментальный (ФКЭ);
 10 – железобетонная защита, 11 – привод регулирующих барабанов.

Рисунок 1 – Схема вертикального разреза ИР ИВГ.1М

Таблица 2 – Технические характеристики реактора ИВГ.1М

Тепловая мощность	6 МВт
Эффективный диаметр активной зоны	548 мм
Загрузка ^{235}U	4,6 кг
Обогащение ^{235}U	90 %
Плотность потока тепловых нейтронов	$0,87 \cdot 10^{14} \text{ н/см}^2 \cdot \text{с}$
Высота активной зоны	800 мм
Расход воды через реактор	до 68 кг/с
Максимальная температура воды	95 °С

Распределение потока нейтронов по высоте экспериментального канала реактора ИВГ.1М представлено на рисунке 2 [9].

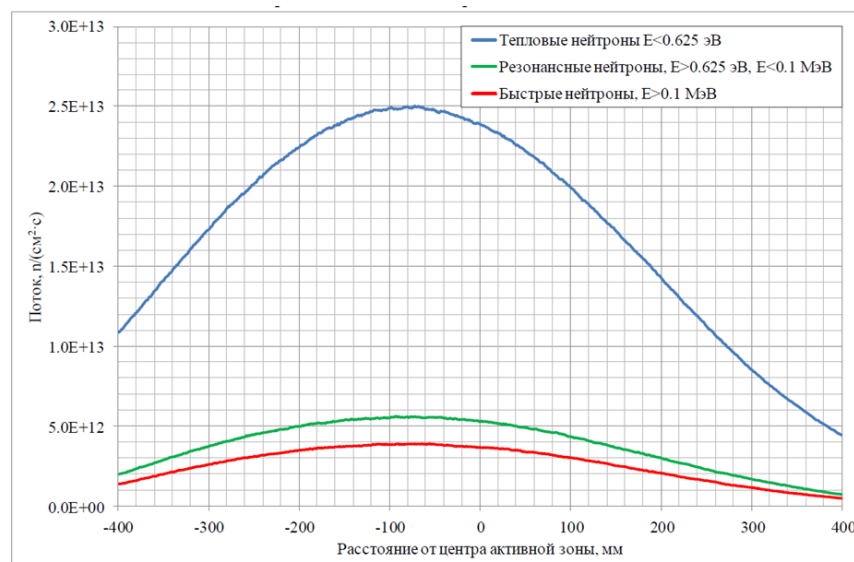


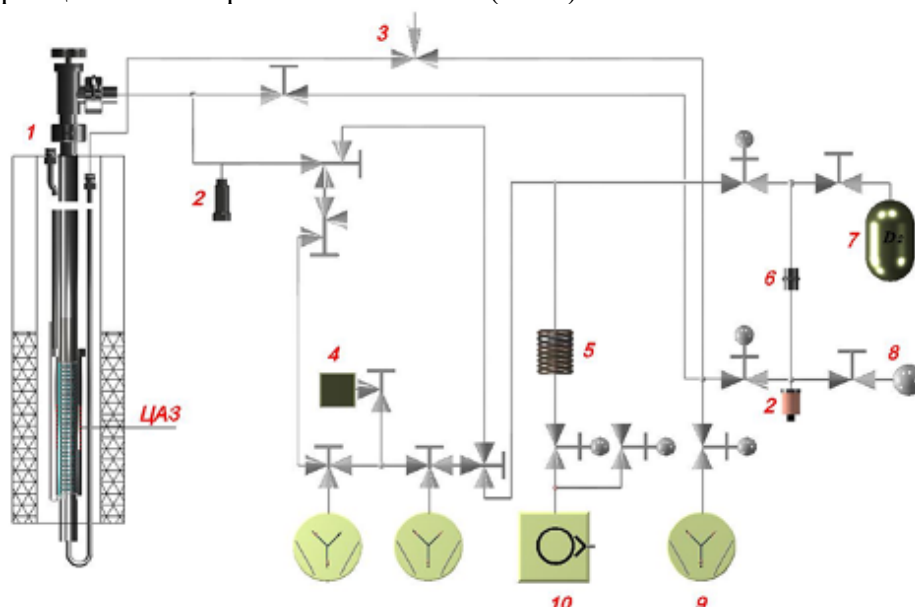
Рисунок 2 – Распределение потока нейтронов по высоте экспериментального канала реактора ИВГ.1М

2.3. Экспериментальный стенд

Исследования проводились на экспериментальном стенде ЛИАНА (рисунок 3), который расположен в реакторном зале ИВГ.1М, и предназначен для изучения взаимодействия водорода и его изотопов с металлами, сплавами и композитными материалами, при различных уровнях нейтронного излучения, в интервале температур от 20 °С до 1000 °С.

Экспериментальный стенд функционально состоит из следующих систем:

- вакуумная система;
- масс-спектрометрический комплекс;
- автоматизированная система нагрева и регулировки температуры образца;
- информационно-измерительная система (ИИС).



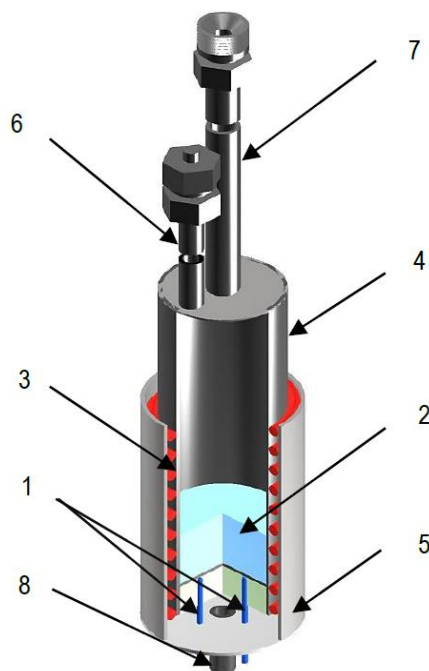
- 1 – ампульное устройство; 2 – датчики давления; 3 – регулятор подачи газа (натекатель);
4 – масс-спектрометр; 5 – азотная ловушка; 6 – палладий-серебряный фильтр; 7 – баллон с газом;
8 – емкость со спектрально чистым газом; 9 – высоковакуумные насосы; 10 – форвакуумный насос

Рисунок 3 – Схема экспериментального стенда ЛИАНА

2.4. Экспериментальное ампульное устройство

Для проведения реакторных экспериментов по определению параметров генерации и выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики на основе результатов аналитического обзора и полученных нейтронно-физических и теплофизических расчетов, была разработана конструкция облучательного ампульного устройства (рисунок 4).

Облучательное ампульное устройство представляет собой герметичную капсулу, изготовленную из нержавеющей стали 12Х18Н10Т с помещенным в нее образцом свинцово-литиевой эвтектики и оснащена штуцером для соединения ее с вакуумной и измерительной системами стенда ЛИАНА.



- 1 – термопары; 2 – свинцово-литиевая эвтектика (масса – 68,5 г); 3 – нагреватель (КТМС ХК);
4 – корпус ампулы; 5 – кожух охлаждения (12Х18Н10Т); 6 – штуцер соединения заливного устройства; 7 – штуцер откачки АУ и соединения с масс -спектрометрической частью;
8 – труба подачи азота

Рисунок 4 – Схема ампульного устройства с образцом свинцово-литиевой эвтектики

Для контроля и регистрации температуры исследуемого образца и корпуса ампулы на поверхности устройства установлены две термопары типа ХА. Облучательное устройство снабжено омическим нагревателем мощностью 200 Вт. Охлаждение АУ производится продуванием газообразного азота через чехол. Особенностью экспериментальной ампулы является наличие прикрепленного к ней специального контейнера, в который изначально помещалась эвтектика для проведения процедуры очистки и последующей заливки в АУ.

2.5. Подготовка и заливка образца свинцово-литиевой эвтектики

Заливка свинцово-литиевой эвтектики в экспериментальное ампульное устройство проводилась на специальном вакуумном стенде. Перед заливкой эвтектики в ампульное устройство были проведены процедуры ее очистки.

Свинцово-литиевая эвтектика, которая применялась для изготовления образцов, изначально имела вид металлического куска с сильно окисленными поверхностями. Чтобы очистить свинцово-литиевую эвтектику от примесей были использованы методы химической очистки (геттерирование) и фильтрации. Для этого в заливное устройство был помещен геттер (цирконий), связывающий растворенные в эвтектике примеси в термически

более прочностные соединения, такие как нитрид циркония, гидрид циркония и т.п., не диссоциирующие в процессе нагрева эвтектики. В качестве фильтра для отделения жидкой эвтектики от крупных частиц оксидов, нитридов и карбидов использовалась мелкоячеистая сетка из нержавеющей стали.

Процедура изготовления исследуемого образца свинцово-литиевой эвтектики была следующей. Сначала эвтектика помещалась в циркониевый стакан, размещенный в герметичном контейнере из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т с установленным штуцером, предназначенным для откачки и последующей заливки эвтектики в АУ. На рисунках 5 и 6 изображены заливное устройство с загруженной эвтектикой и конструкция экспериментального устройства.



Рисунок 5 – Заливное устройство с загруженной эвтектикой и экспериментальная ячейка

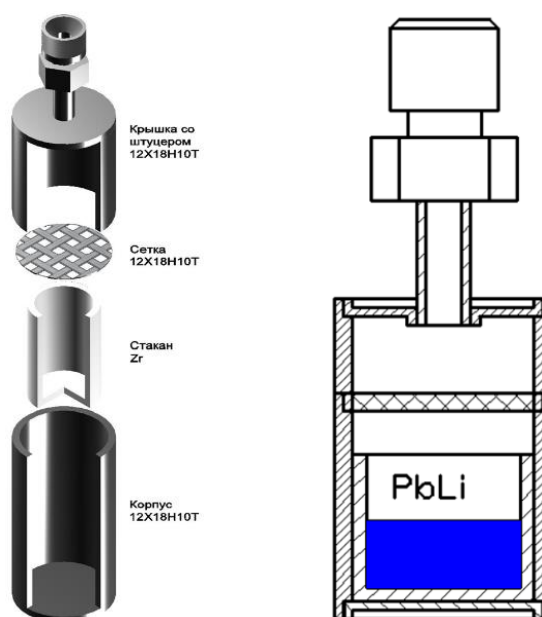


Рисунок 6 – Конструкция экспериментального устройства

Затем при помощи средств без масляной откачки контейнер вакуумировался до давления порядка 10^{-5} торр. Схема соединения экспериментального устройства с вакуумной системой представлена на рисунке 7.

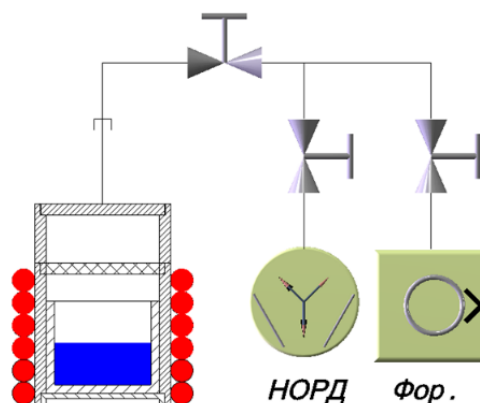


Рисунок 7 – Схема соединения экспериментального устройства с вакуумной системой

Далее, с помощью омического нагревателя контейнер нагревался до температуры $750\text{ }^{\circ}\text{C}$ и выдерживался в течение 2,5 часов в условиях непрерывной откачки, после чего нагреватель выключали, и эвтектика остывала до комнатной температуры, затем в контейнер напускался аргон. По завершению вышеописанных процедур контейнер подсоединялся к ампульному устройству, вся конструкция откачивалась до давления не выше 10^{-5} торр и нагревалась до температуры порядка $500\text{ }^{\circ}\text{C}$. Далее производилась заливка расплава свинцово-литиевой эвтектики через мелкоячеистую металлическую сетку на дно АУ. Схема заливки приведена на рисунке 8.

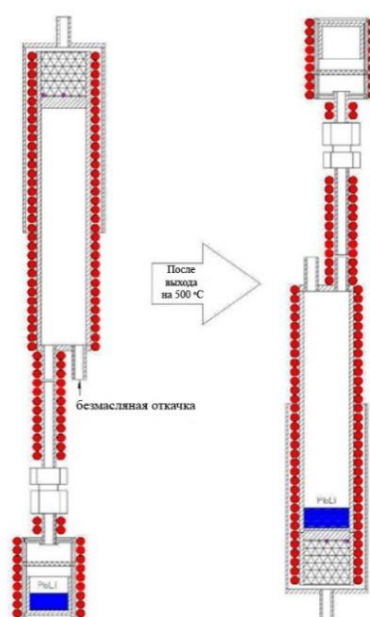


Рисунок 8 – Схема заливки эвтектики в экспериментальную ячейку

На следующем этапе был проведен монтаж облучательного ампульного устройства. На экспериментальную ячейку были установлены термоэлектрические преобразователи типа ХА и омический нагреватель. Также на ампуле была смонтирована система охлаждения ячейки газообразным азотом.

По окончании монтажа ампульное устройство было проверено на герметичность методом обдува гелием при помощи квадрупольного масс-спектрометра RGA-100, после чего при помощи дополнительных внешних нагревателей был проведен технологический отжиг ампулы в условиях непрерывной высоковакуумной откачки при температуре ячейки $700\text{ }^{\circ}\text{C}$ в течение 1 ч.

После проведения всех необходимых технологических процедур и проверки на герметичность, облучательное ампульное устройство с образцом свинцово-литиевой эвтектики было загружено в центральный экспериментальный канал реактора ИВГ.1М (образец находился в центре активной зоны) и подсоединено к экспериментальному стенду ЛИАНА (рисунок 9).



Рисунок 9 – Загрузка ампульного устройства в ФКЭ ИВГ.1М

3. Реакторные эксперименты

Для исследований выделения трития и гелия из образца свинцово-литиевой эвтектики были проведены эксперименты двух типов:

1. Эксперименты по выделению трития и гелия в камере с непрерывной откачкой, без подачи дейтерия;
2. Эксперименты по выделению трития и гелия в непрерывно откачиваемой камере, с подачей дейтерия.

3.1. Эксперименты по выделению трития и гелия без подачи дейтерия

Для проведения облучательных экспериментов был использован десорбционный метод. Десорбционный метод основан на изучении процессов миграции газов из образца в окружающую среду, при этом в процессе экспериментов регистрируется увеличение концентрации газов в рабочей камере. В нашем случае был использован дифференциальный вариант этого метода – регистрируется изменение потока газа из образца во времени, в процессе непрерывной вакуумной откачки.

Сценарий проведения реакторного эксперимента был следующим:

1. В начале эксперимента реактор ИВГ.1М выводился на уровень стационарной тепловой мощности реактора 6 МВт, в процессе выхода на мощность при помощи системы охлаждения, температура образца была установлена на уровне 150 °С.
2. После выдержки на полке порядка 1 минуты температура образца поднималась до уровня 200 °С и образец выдерживался на данной температуре около 6 мин.
3. Затем температура образца поэтапно поднималась до 225 °С, 265 °С, 300 °С, 390 °С, 520 °С, 550° С и выдерживалась на каждой температуре порядка от 8 до 14 мин.
4. Далее с целью отжига эвтектики температура образца поднималась до температуры 858 °С и после кратковременной выдержки образец охлаждался до температуры 250 °С. Затем через некоторое время следовал сход реактора с мощности.

На всем протяжении реакторного эксперимента при помощи квадрупольного масс-спектрометра RGA-100 в реальном времени в условиях непрерывной вакуумной откачки велась регистрация состава газа в объеме ампульного устройства над образцом свинцово-

литиевой эвтектики. Температура образца регистрировалась при помощи термоэлектрического преобразователя типа ХА.

3.1.1. Результаты экспериментов по выделению трития и гелия без подачи дейтерия

Результаты экспериментов по облучению свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb в условиях нейтронного облучения на стационарной мощности реактора 6 МВт при различных температурных режимах исследуемого образца приведены на рисунке 10.

Обозначения основных газов на графиках соответствует следующим соединениям М2 – водород (H_2^+); М3 – молекула HD^+ ; М4 – дейтерий (D_2^+), гелий (He^+) и молекула HT^+ ; М5 – молекула DT^+ ; М6 – тритий (T_2^+).

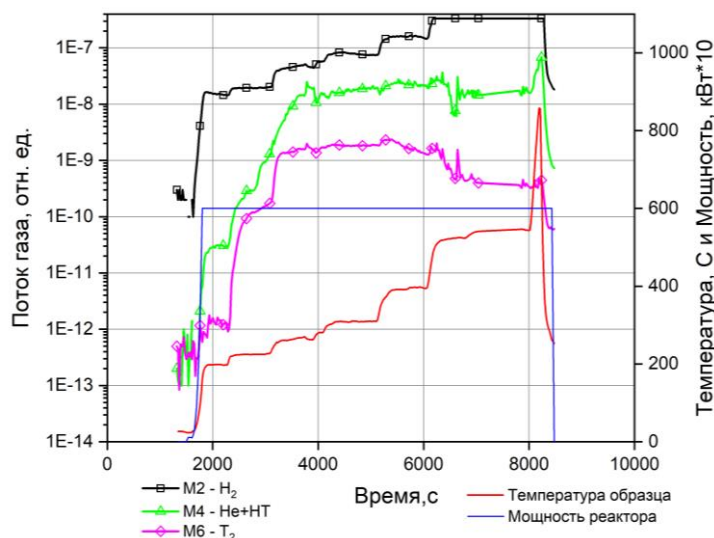


Рисунок 10 – Изменение парциального давления газов в объеме АУ с образцом Li15.7Pb на мощности реактора 6 МВт

Из диаграммы видно, что в системе присутствует большое количество водорода, который активно десорбируется как со стенок экспериментальной ячейки, так и из образца. С повышением температуры выделение водорода растет.

Тритий в виде молекулы T_2 начинает выделяться из образца уже при температуре 200 С, что объясняется выходом молекул газа из приповерхностной области. Отмечается резкий рост выхода трития (T_2) при температуре 220 °С. При нагреве эвтектики до температуры 260 °С выход трития (T_2) приобретает квазистационарный характер (отмечается плато на графике с характерными небольшими пиками). Далее, с повышением температуры от 400 °С до 525 °С поток трития спадает.

Массовому числу 4 соответствуют две молекулы, присутствующие в системе – HT , He . В целом изменение суммы давления гелия и молекулы HT за время эксперимента по форме повторяет выделение молекулы T_2 .

Для качественного анализа получившейся картины газовой выделенности из свинцово-литиевой эвтектики в условиях облучения предложена простая модель, которая имеет следующие допущения:

Для каждой температуры существует квазиравновесное состояние, при котором уровень выделения газов можно считать постоянным. Данному состоянию соответствует некоторые квазиравновесные концентрации атомов Н и Т ($C_{\text{H}}, C_{\text{T}}$) на поверхности эвтектики.

Тогда при выбранной температуре квазиравновесные потоки газов в систему (согласно закону Полани-Вигнера [10]) можно записать в следующем виде:

$$\varphi(H_2) = b_1 \cdot C_H^2 \quad (2)$$

$$\varphi(HT) = b_2 \cdot C_H \cdot C_T \quad (3)$$

$$\varphi(T_2) = b_3 \cdot C_T^2 \quad (4)$$

Сделав еще предположение, что $b_1 \sim b_2 \sim b_3$, нами были оценены температурные зависимости квазиравновесной концентрации трития на поверхности эвтектики и определены абсолютные значения потоков газов из эвтектики (рисунок 11).

Также определена эффективность выделения трития из эвтектики (см. рисунок 12). Эффективность выделения трития (К): определялась по формуле:

$$K = (2 \cdot \varphi(T_2) + \varphi(HT)) / R, \quad (4)$$

где R – генерация трития, моль/с.

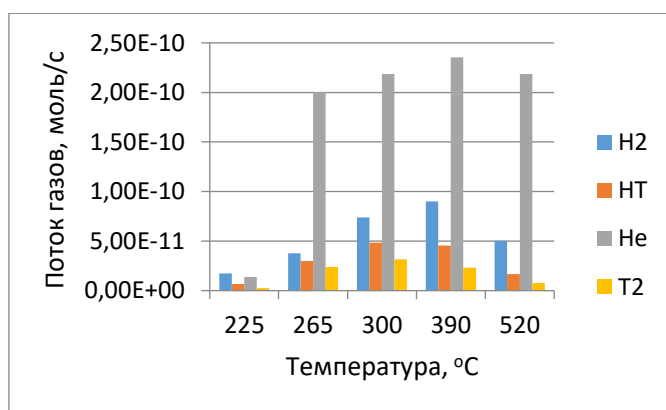


Рисунок 11 – Абсолютные значения потоков газов из эвтектики

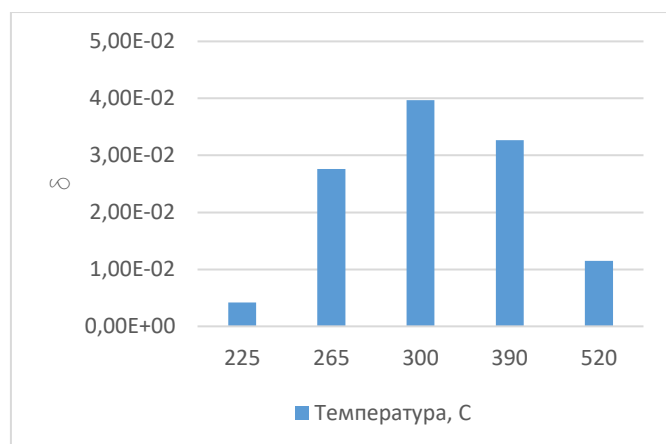


Рисунок 12 – Эффективность выделения трития

Как видно из рисунка 12, эффективность выделения трития в диапазоне температур от 250 °C до 390 °C примерно одинакова (с максимумом при температуре 300 °C) и существенно снижается при повышении температуры.

Кроме этого видно, что в эксперименте не наступает истинного равновесного состояния: скорость выделения трития составляет не более 5 % от скорости его наработки в образце. Для достижения равновесного состояния требуется более длительное облучение, которое будет выполнено в дальнейшем.

3.2. Эксперименты по выделению трития и гелия с подачей дейтерия

Как показали результаты экспериментов, проведенные на первом этапе, наличие водорода в образце свинцово-литиевой эвтектики значительно усложняет интерпретацию результатов. На данном этапе возникают также трудности с количественной оценкой выделения водорода непосредственно из самого образца и материала ячейки (который также разогревается). Поэтому после первого этапа экспериментов было принято решение о проведении дегазации образца и экспериментальной ячейки, с целью снизить концентрацию водорода в эвтектике. Таким образом было проведено еще 3 пуска реактора с нагревом образца свинцово-литиевой эвтектики до ~ 500 °С. В результате процесса дегазации общее фоновое значение водорода, выделяющегося из образца и экспериментальной ячейки, уменьшилось в 50 раз. После чего были проведены эксперименты по выделению трития и гелия из образца свинцово-литиевой эвтектики с подачей дейтерия.

Подача дейтерия в камеру осуществлялась с целью лучшего раскрытия механизма выделения трития с поверхности эвтектики, в частности для исключения влияния водорода на выделение трития.

Сценарий проведения реакторного эксперимента был следующим:

- 1) во время облучения в непрерывно откачиваемую камеру с образцом свинцово-литиевой эвтектики подавался поток высокочистого дейтерия ($\sim 10^{-9}$ моль / с);
- 2) начальная температура образца составляла 250 °С, затем температура образца поэтапно поднималась до 280 °С, 320 °С, 380 °С, 430 °С, 470 °С. Выдерживание каждой температурной полки осуществлялось до наступления квазиравновесного состояния выделения молекул трития.
- 3) Далее с целью отжига эвтектики температура образца поднималась до температуры 860 °С и после кратковременной выдержки образец охлаждался. Затем через некоторое время следовал сход реактора с мощности.

3.2.1. Результаты экспериментов по выделению трития и гелия с подачей дейтерия

Поскольку парциальное давление дейтерия в камере было значительно выше давления водорода, основными молекулами, выделяющимися в газовую фазу, были молекулы DT и T₂ (рисунок 13).

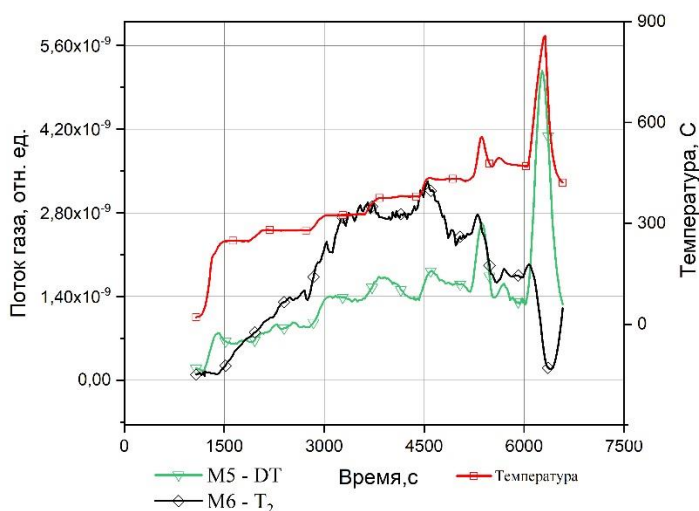


Рисунок 13 – Изменение парциальных давлений газов в процессе эксперимента

Согласно полученным данным мы можем сказать:

1) как мы видим выделение молекулы T_2 начинается с момента выхода реактора на рабочую мощность и продолжает расти, не достигая квазистационарного значения на первой температурной полке 250 °C;

2) на всех остальных температурных полках выделение молекулы трития достигает квазистационарного состояния. Мы видим, как происходит увеличение выделения трития при температуре от 280 °C до 320 °C и снижение при температурах от 380 °C до 470 °C;

3) далее, при постоянном нагреве от 470 °C до 850 °C выделение трития снижается практически до нуля, а при охлаждении возвращается на прежний уровень;

4) выделение молекул DT достигает квазистационарных значений на всех температурных полках, и постепенно увеличивается при повышении температуры до 430 °C, после достижения температуры 470 °C выделения DT незначительно уменьшается;

5) при постоянном нагреве до 850 °C и последующем охлаждении выделение молекулы DT происходит совершенно противоположно выделению молекулы T_2 – оно увеличивается при нагревании и уменьшается при охлаждении. На рисунке 14 представлены абсолютные значения молекул T_2 и DT выделяющиеся из образца в процессе нагрева.

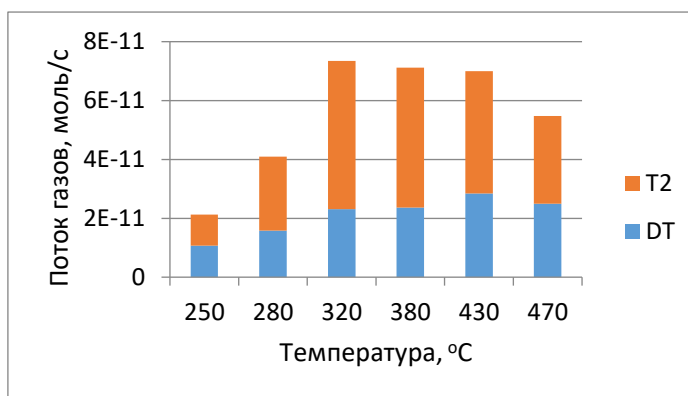


Рисунок 14 – Абсолютные значения выделения молекул T_2 и DT из образца

Таким образом, согласно рисунку 15, мы видим, что во время подачи дейтерия в камеру с образцом эффективность выделения трития выше, чем без него. Скорее всего это связано с тем, что наличия атомов дейтерия на поверхности эвтектики облегчает реакцию ассоциации атомов трития и его выделение в газовую фазу. Также мы видим, как и для первых экспериментов, при температуре выше ~ 400 °C эффективность выделения трития снижается.

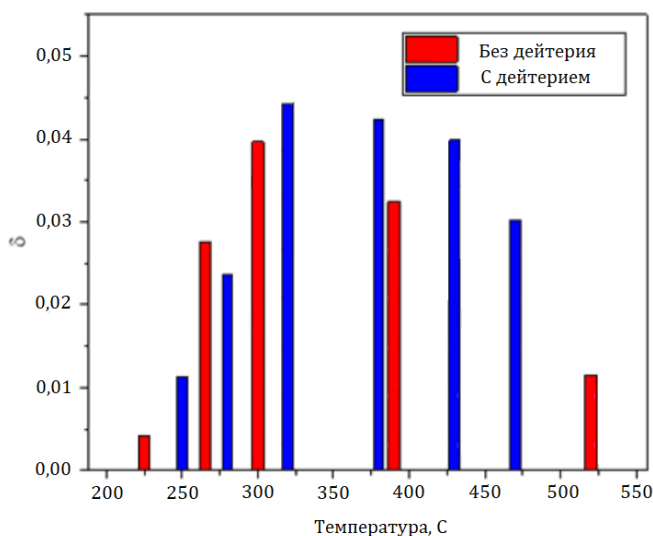


Рисунок 15 – Эффективность выделения трития из свинцово литиевой эвтектики

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполнения данной работы был осуществлён аналитический обзор существующих экспериментальных данных по способам извлечения трития из жидкометаллических литий-содержащих материалов ТЯР.

Разработано и создано экспериментальное ампульное устройство. А также осуществлена подготовка и выполнен ряд экспериментов с образцом свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb.

В настоящей работе были впервые получены новые экспериментальные данные, а именно: зависимости выделения тритиевых молекул и гелия из свинцово-литиевой эвтектики Li15.7Pb в условиях нейтронного облучения при различных температурах.

Проведена оценка и получена температурная зависимость эффективности выделения трития. Оптимальная температура генерации и выделения трития составляет ~ 300 °С. Согласно полученным данным мы видим, что эффективность выхода трития при подаче дейтерия в камеру с образцом выше, чем при постоянной откачке без дейтерия. Связано это с тем, что наличия атомов дейтерия на поверхности эвтектики облегчает реакцию ассоциации атомов трития и его выделение в газовую фазу в виде молекул DT и T₂.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Technologies and modelling issues for tritium processing in the European Test Blanket Systems and perspectives for DEMO / I. Ricipito, P. Calderoni, Y. Poitevin, A. Aiello // Fusion Engineering and Design.– 2014.– 89.– P. 1469-1475.
2. Comparison of lithium and the eutectic lead lithium alloy, two candidate liquid metal breeder materials for self-cooled blankets / S. Malang, R. Mattas // Third International Symposium on Fusion Nuclear Technology, University of California at Los Angeles, June 27 - July 1, 1994.
3. Consistent integration in preparing the helium cooled lithium lead DEMO-2007 reactor / A. Li-Puma, J. Bonnemason, L. Cachon, J.L. Duchateau, F. Gabriel // Fusion Engineering and Design.– 2009.– 84.– P. 1197-1205.
4. In-reactor tritium release experiment from molten lithium alloy (Li17Pb83) / T. Terai, S. Nagai, Y. Takahashi // J.Nucl.Mater.– 1991.– Vol. 179-181.– P. 871-874.
5. Irradiation facilities for testing solid and liquid blanket breeder materials with in-situ tritium release measurements in the HFR Petten / R. Conrad, L. Debarberis // J.Nucl.Mater.– 1991.– Vol. 179-181, Part 2.– P. 1158-1161.
6. Tritium release from PbLi natural convection loop under neutron irradiation / A. Suzuki, J. Yagi, M. Nagura, D. Komiyama, T. Terai // Fusion Science and Technology.– 2012.– 62:1.– P. 295-299.– DOI: 10.13182/FST12-A14150.
7. Interaction of Pb-16Li melt with EUROFER97 under higher temperature and neutron irradiation / K. Splichal, J. Berka [et al.] // Fusion Engineering and Design.– 2018.– Vol. 126.– P. 73-78.
8. Sadvakassova A.O. et al. Research of Reactor Radiation Influence upon Processes of Hydrogen Isotopes Interaction with Materials of the Fusion Facility. Fusion Science and Technology. 2011. 60(1T), P. 9–15. doi:10.13182/fst11-a12398
9. Техническая справка Поток нейтронов и гамма излучения в полости ФКЭ ИВГ.1М Пахниц А.В. Курчатова РГП ИАЭ НЯЦ РК 2018 г с 6.
10. Elliott, J. A. W. and Ward, C. A. Temperature programmed desorption / J. A. W. Elliott, C. A. Ward // J. Chem. Phys.– 1997.– Vol. 106.– P. 13-18.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Список публикаций по теме

1. Исследование наработки трития и гелия в литий содержащих метариалах и их выделения (Обзор) / Ж.А. Заурбекова, А.А. Ситников, Т.В. Кульсартов, И.Л. Тажибаева, Ю.В. Понкратов, В.С. Гныря, Г. Кизане // ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез,– 2018.– т.41, вып. 4.
2. Методология проведения экспериментов по генерации и выделению трития из свинцово-литиевой эвтектики $\text{Li}_{15.7}\text{Pb}$ в процессе реакторного облучения / Ю.В. Понкратов, И.Л. Тажибаева, Ж.А. Заурбекова, Ю.Н. Гордиенко, В.С. Гныря, И.В. Прозорова, Е.А. Мартыненко // Вестник НЯЦ РК.– 2018.– № 3.– IF = 0,145.
3. Technique of conducting experiments on tritium generation and release from lead-lithium eutectics under reactor irradiation conditions / Zh. A. Zaurbekova, Yu.V. Ponkratov, Yu.N. Gordienko, I.L. Tazhibayeva, V.S. Gnyrya, I.V. Prozorova, E.A. Martynenko, Ye.V. Chikhray // Abstracts of V Inter. Sci. and Tech. Conf. «Innovative Designs and Technologies of Nuclear Power, Oct. 2-5, 2018, Moscow».– NIKIET, 2018.
4. Kulsartov, T.V. Study of tritium and generation and release from lead-lithium eutectics $\text{Li}_{15.7}\text{Pb}$ under neutron irradiation / T.V Kulsartov, Zh.A. Zaurbekova, I.L. Tazhibayeva, Yu.V. Ponkratov, G. Kizane, E. Nesterov, N. Varlamova // Fusion Engineering and Design.– 2019.– Vol. 146.– P.402-405. (IF = 1.46, БД Scopus, 2018).
5. Tulubaev, Ye.Yu. Estimation and mode selection of deuterium flux supply into ampoule device through diffusion filter in experiments with Pb-15.7Li eutectic at the IVG.1M reactor / Ye.Yu. Tulubayev, M.K. Skakov, Yu.V. Ponkratov, Yu.N.Gordienko, Zh.A. Zaurbekova // Eurasian Chemico-Tehnological Journal.– 2019.– Vol. 21.– P.19-23. (IF = 0.52, БД Scopus, 2018).