

## ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ВЫДЕЛЕНИЯ ГЕЛИЯ И ТРИТИЯ ИЗ СВИНЦОВО-ЛИТИЕВОЙ ЭВТЕКТИКИ В УСЛОВИЯХ РЕАКТОРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

*Т. В. Кульсартов<sup>1</sup>, Е. В. Чихрай<sup>1</sup>, В. П. Шестаков<sup>1</sup>,  
А. О. Муканова<sup>1</sup>, И.Е.Кенжина<sup>1</sup>,  
И. Л.Тажибаява<sup>2</sup>, Ю. Н. Гордиенко<sup>2</sup>, Ж. А. Заурбекова<sup>2</sup>,  
В. С. Гныря<sup>2</sup>, В. В. Бакланов<sup>2</sup>*

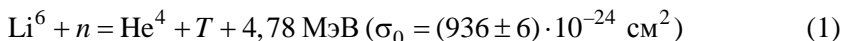
<sup>1</sup>Научно-исследовательский институт экспериментальной и теоретической физики, Алматы, Казахстан

<sup>2</sup>Институт атомной энергии Национальный ядерный центр Республики Казахстан, Курчатов, Казахстан  
tima@physics.kz

### Введение

Термоядерные реакторы (ТЯР) первого поколения будут работать на дейтерий-тритиевом топливе. Поскольку запасов трития в природе нет, то оптимальным решением задачи наработки трития является его производство непосредственно в термоядерной энергетической установке. Поэтому проектируемые ТЯР обычно содержат бланкет, окружающий вакуумную камеру реактора. Существует два вида материалов, планируемых для использования в качестве материала бланкета: твердые литийсодержащие материалы (а именно литиевые керамики) и жидкие литийсодержащие материалы ( $\text{Li}_2\text{BeF}_4$  ( $T_{\text{пл}} = 732$  К);  $\text{LiBeF}_3$  ( $T_{\text{пл}} = 653$  К);  $\text{FLiNaBe}$  ( $T_{\text{пл}} = 593$  К); жидкая свинцово-литиевая эвтектика  $\text{PbLi}$ ) [1–3].

Использование литийсодержащих материалов в бланкете связано с тем, что под действием нейтронного облучения в литии нарабатывается тритий в результате ядерной реакции



Свинцово-литиевая эвтектика имеет ряд особенностей, которые делают ее привлекательной в качестве кандидата материала для использования в бланкете ТЯР. Преимуществами свинцово-литиевой эвтектики являются:

1. Высокая стойкость к радиационному повреждению. Так как речь идет о жидкости, то здесь не существует проблем с ограничением времени работы материала внутри камеры.

2. Низкая химическая активность.

3. Более высокая по сравнению с керамическими материалами теплопроводность.

4. Возможность извлечения наработанного трития за пределами бланкета. Так как свинцово-литиевая эвтектика циркулирует по системе, то нет не-

обходимости производить отделение трития непосредственно в установке бланкета. Такая особенность позволяет сделать систему для удаления трития более универсальной и отделить ее от радиационно-напряженных внутрикамерных компонентов.

5. Возможность работы на низких уровнях давления в системе. Жидкометаллические системы потенциально могут применяться при высоких температурах для повышения коэффициента преобразования энергии, но при низких давлениях ввиду высоких температур кипения металлов [4].

Исследования, связанные с определением параметров наработки и выделения трития и гелия из вышеуказанного материала непосредственно в условиях облучения, немногочисленны. Соответственно существует проблема, связанная с выяснением механизмов и моделей, позволяющих описать процессы генерации, наработки, диффузии и выделения трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики в условиях нейтронного облучения.

В представляемой работе приводятся результаты первого этапа реакторных экспериментов по исследованию процессов генерации и выделения гелия и трития из свинцово-литиевой эвтектики.

## Основная часть

### Исследуемый материал

В качестве исследуемого материала был выбран образец свинцово-литиевой эвтектики  $Pb_{83}Li_{17}$ , масса которого составляла 50,77 г.

### Экспериментальный стенд ЛИАНА

Эксперименты по исследованию процессов выделения изотопов водорода из свинцово-литиевой эвтектики проводились на экспериментальном стенде ЛИАНА, размещенном в реакторном зале исследовательского реактора ИВГ.1М. Экспериментальный стенд ЛИАНА предназначен для проведения исследований взаимодействия изотопов водорода с металлами и сплавами при различных температурах образца и входных давлениях газов при воздействии реакторного излучения.

Принципиальная схема экспериментального стенда ЛИАНА представлена на рис. 1.

Экспериментальный стенд функционально состоит из следующих систем:

- вакуумная система;
- система нагрева на базе высокоточного регулятора температуры (ВРТ);
- информационно-измерительная система (ИИС).

Вакуумная система позволяет провести подготовку стенда к работе и обеспечивает условия проведения экспериментов. Она состоит из форвакуумной и высоковакуумной частей, трубопроводов с запорной арматурой. Система оснащена вакуумным насосом (НВП-5ДМ) с азотной ловушкой и магниторазрядными насосами (НЭМ-300, НОРД-100 и НОРД-250). Насос НВП-5ДМ с азотной ловушкой служит для предварительной откачки всей системы и обеспечивает минимальный вакуум для начала работы магниторазрядных насосов. Насосы НЭМ-300, НОРД-100 и НОРД-250 создают необходимые условия для проведения экспериментов.

Азот

охлаждение 2

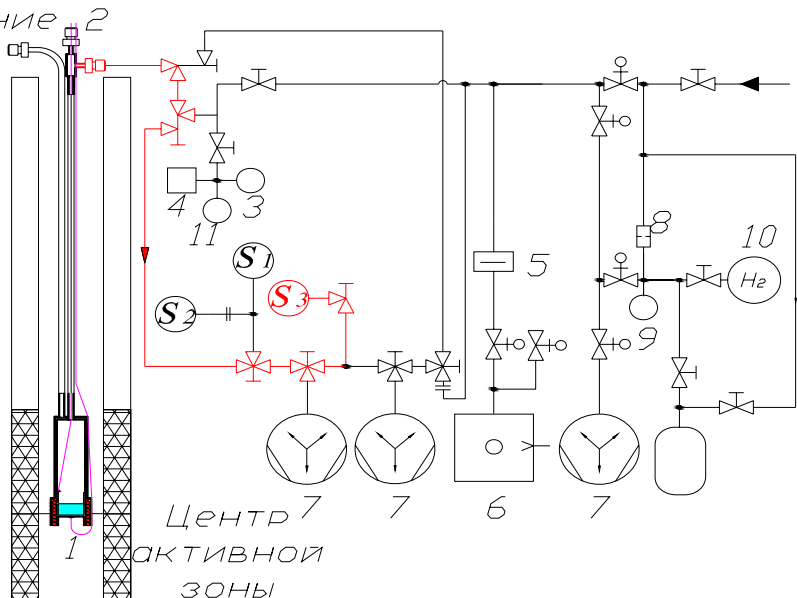


Рис. 1. Принципиальная схема реакторного экспериментального стенда ЛИАНА: 1 – ампульное устройство с образцом свинцово-литиевой эвтектики; 2 – термопары; 3 – датчик давления Convectort; 4 – датчик давления ИКД; 5 – азотная ловушка; 6 – форвакуумный насос; 7 – высоковакуумный насос; 8 – палладий-серебряный фильтр; 9 – датчик давления ПМДГ; 10 – емкость с водородом; 11 – датчик давления IMG-100; S1, S2, S3 – масс-спектрометры

Система нагрева обеспечивает реализацию всех необходимых температурных режимов (в диапазоне температур 373–973 К) в проводимых экспериментах с точностью  $\pm 2$  К.

### Ампульное устройство

Для проведения экспериментов по генерации и выделению трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики было разработано и изготовлено ампульное устройство с экспериментальной ячейкой, в которой размещался исследуемый образец. Схематический вид ампульного устройства с экспериментальной ячейкой представлен на рис. 2.

Ампульное устройство снабжено омическим нагревателем, предназначенным для нагрева исследуемого образца и обеспечения поддержания выбранных температурных режимов в проводимых экспериментах. Для контроля и регистрации температуры образца установлены две термопары ХА (хромель-алюмель). Также для поддержания исследуемой температуры образца при проведении реакторных экспериментов на ампульном устройстве смонтирована система охлаждения в виде одетого на экспериментальную ячейку чехла, через который продувается газообразный азот. Корпус ампульного устройства изготовлен из стали 12Х18Н10Т.

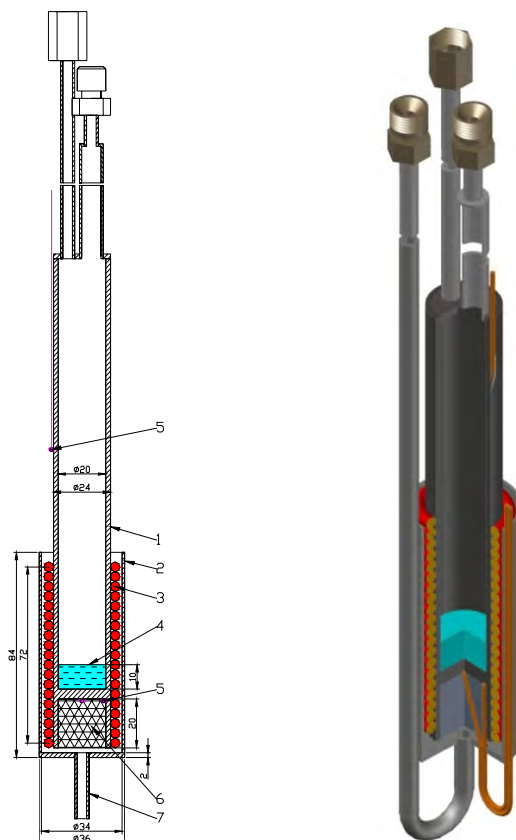


Рис. 2. Ампульное устройство: 1 – корпус ампулы (12Х18Н10Т); 2 – кожух охлаждения (12Х18Н10Т); 3 – нагреватель; 4 – образец; 5 – термопары; 6 – теплоизоляция; 7 – труба подачи азота

### Методика проведения исследований

Для определения параметров выделения изотопов водорода и гелия из свинцово-литиевой эвтектики был выбран метод масс-спектрометрической регистрации выделяющихся газов. Суть метода заключалась в следующем: после того, как в ампуле с исследуемым материалом достигались все необходимые условия (температура образца, уровень мощности реактора), проводилась масс-спектрометрическая регистрация потоков выделяющихся газов. Тракт от ампулы к масс-спектрометру, по которому газ поступал в измерительную систему, выделен на рис. 2 красным цветом.

В представленной работе анализируются зависимости выделения гелия и трития из свинцово-литиевой эвтектики на начальном этапе реакторных исследований.

Условия проведения экспериментов были следующие:

- исследуемая температура образца – 573, 673, 773 К;
- остаточное давление в измерительном тракте –  $10^{-4}$  Па;
- тепловая мощность реактора ИВГ.1М – 1, 2, 6 МВт (табл. 1).

Таблица 1

Нейтронный поток реактора ИВГ.1М при мощности 1МВт  
(нейтронный поток пропорционален мощности реактора в диапазоне 1–6МВт)

Энергетическая группа	0–0,67 эВ	0,67 эВ – 0,1 МэВ	0,1–10 МэВ	Интегральный поток
Нейтронный поток, $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$	$0,15 \cdot 10^{14}$	$0,07 \cdot 10^{14}$	$0,04 \cdot 10^{14}$	$0,25 \cdot 10^{14}$

## Результаты экспериментов, их обработка и анализ

### Результаты экспериментов

На рис. 3 представлена полная диаграмма серии реакторных экспериментов по исследованию выделения трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики. На данном рисунке представлены графики изменения мощности реактора, температуры образца, временные зависимости изменения парциальных давлений исследуемых газов (с массовыми числами 2, 4, 6) за время проведения эксперимента с образцом свинцово-литиевой эвтектики.

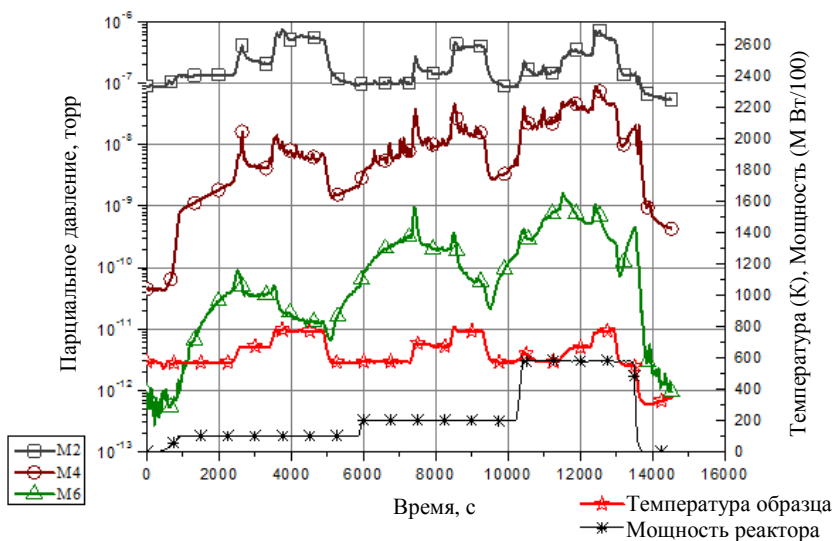


Рис. 3. Диаграмма реакторного эксперимента по исследованию газовой выделению из образца свинцово-литиевой эвтектики

Как видно из диаграммы, выделение трития и гелия из свинцово-литиевой эвтектики носит следующий качественный характер:

1) Выделение гелия на начальном этапе облучения происходит линейно от времени, в дальнейшем при изменении условий облучения (мощности реактора и температуры эвтектики) носит сложный характер: наблюдаются пики выделения при увеличении температуры образца, которые со временем уменьшаются. В целом, поток гелия из образца увеличивается при увеличении температуры образца и при увеличении мощности реакторного облучения.

2) Выделение трития на начальном этапе облучения начинается существенно позже, чем выделения гелия и имеет параболическую зависимость от времени. В дальнейшем выделение трития также носит сложный характер: поток трития существенно снижается при повышении температуры образца, и увеличивается при увеличении мощности реакторного облучения.

3) Средняя скорость выделения трития и гелия зависит от мощности реактора. Причем для гелия (рис. 4) наблюдается зависимость близкая к прямой пропорциональности для всех уровней мощности, в то время как для трития (рис. 5) эта зависимость наблюдается для мощностей 2 и 6 МВт.

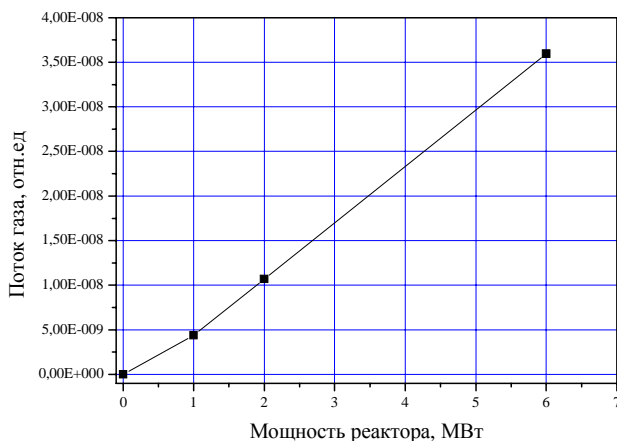


Рис. 4. Зависимость среднего потока гелия из образца в зависимости от мощности реактора

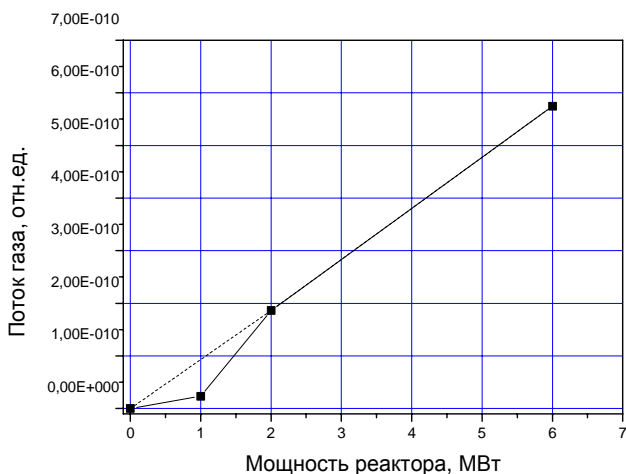


Рис. 5. Зависимость среднего потока трития из образца в зависимости от мощности реактора

Необходимо пояснить нашу интерпретацию полученных зависимостей изменения парциальных давлений газов с массовыми числами (4, 6), с точки зрения анализа методических особенностей проводимых измерений:

1) Прежде всего, мы полагаем, что парциальное давление газов 4 массы – это, в основном, парциальное давление гелия. Это связано с тем, что в эксперименте применялась откачка вакуумной системы магниторазрядным насосом НОРД-100, а скорости откачки изотопов водорода и гелия для такого насоса сильно отличаются (более чем на 2 порядка). Для водорода она составляет около 300 л/с; для гелия же около 3 л/с, что соответственно влияет на коэффициенты калибровки. Таким образом, можно полагать, что парциальное давление газов 4 массы – в основном, определяется давлением гелия (а не молекулой НТ при одинаковых количествах их в камере установки). Здесь также важно отметить, что при появлении гелия в камере установки наблюдается заметный рост парциальных давлений водорода, который вызван его потоком с титановых пластин насоса, которые разогреваются при разряде если в объеме насоса находится инертный газ.

2) Вывод о том, что тритий выделяется в основном в виде молекулы  $T_2$  сделан нами на основе специального эксперимента, который был проведен в исследованиях, выполненных позже представленного эксперимента: в настоящей работе приведены данные одного (первого) реакторного пуска (всего же их было проведено 4). Сам эксперимент заключался в следующем: при нейтронном облучении при исследуемых температурах образца, что и в представленном пуске, при достижении стационарного выделения трития в камеру с образцом было организовано натекание дейтерия на уровне давления выше парциального давления водорода более чем в 20 раз. Проводилась регистрация зависимости изменения давлений газов с массовыми числами 5 ( $DT$ ) и 6 ( $T_2$ ), которая показала, что не наблюдалось существенного увеличения давления газа с массовым числом 5, а также существенного снижения давления газа с массовым числом 6. На основе этих данных был сделан вывод, что увеличение уровня давления изотопов водорода (дейтерия) в вакуумной камере (более чем в 20 раз) не приводит к существенному изменению давления трития, и соответственно можно полагать, что тритий в основном выделяется в виде молекулы  $T_2$ .

*Анализ результатов экспериментов и разработка феноменологической модели, описывающей процессы миграции гелия и трития в литий-свинцовой эвтектике при температуре 573 К в начальный момент реакторного облучения.*

Первоначально в настоящей работе проводился анализ первого этапа реакторных экспериментов, а именно первые несколько минут реакторного облучения на мощности реактора 1 МВт при температуре свинцово-литиевой эвтектики равной 573 К. Как видно из графиков (рис. 3), после начала реакторного облучения происходит выделение трития и гелия (увеличиваются пики, соответствующие массовым числам 4 и 6).

На рис. 6 приведен увеличенный участок диаграммы проведенных экспериментов, соответствующий начальному периоду выделения трития и гелия из образца свинцово-литиевой эвтектики. Из графиков видно, что на момент начала облучения трития и гелия в камере с образцом не было. При выходе реактора на мощность видно, что гелий начинает выделяться сразу и его выделение повторяет график выхода реактора на мощность, в то время как тритий выделяется с явным отставанием. Для детального описания данного эф-

факта рассмотрим процессы, происходящие в свинцово-литиевой эвтектике под действием реакторного облучения.

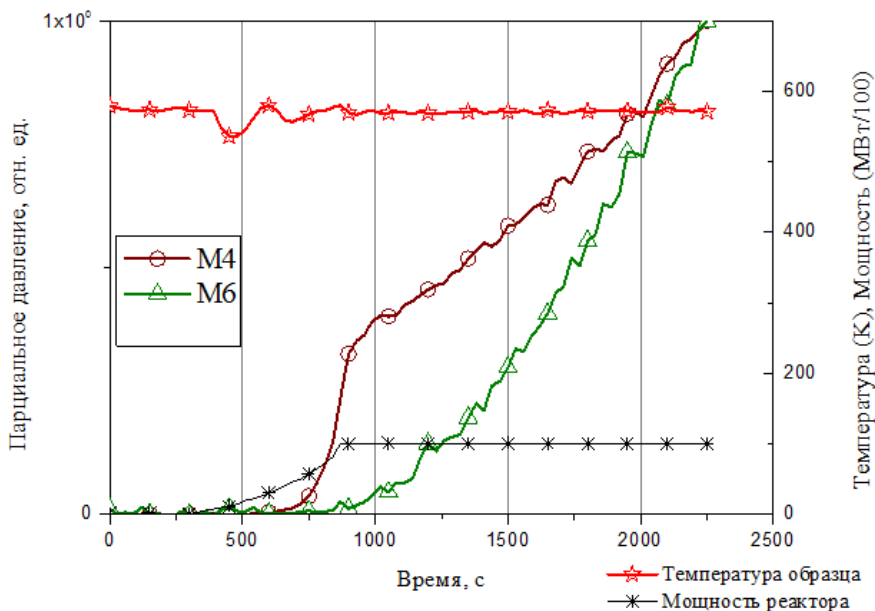


Рис. 6. Нормированные зависимости газовыделения трития и гелия из образца литий-свинцовой эвтектики в начальный период выхода реактора на мощность 1 МВт

Рассмотрим качественно процессы, происходящие в свинцово-литиевой эвтектике под воздействием реакторного облучения.

Тепловой нейтрон взаимодействует с литием-6 и образуются атомы гелия и трития согласно реакции (1).

Причем скорость реакции взаимодействия нейтронов с атомом лития-6 в образце можно оценить по формуле (данная формула получена из классической формулы для скорости реакции лития-6 с нейтроном с приведением ее в размерность моль/с, учитывая объем образца):

$$R = \Phi_0 \Sigma \frac{V}{N_A}, \quad (2)$$

где  $\Phi_0$  – нейтронный поток в реакторе на мощности 1 МВт,  $\text{н}/(\text{м}^2 \cdot \text{с})$ ;  $\Sigma$  – макроскопическое сечение реакции,  $1/\text{м}$ ;  $V$  – объем эвтектики,  $\text{м}^3$ ;  $N_A$  – число Авогадро,  $1/\text{моль}$ .

Полученная скорость реакции определяет также скорость наработки атомов трития, гелия в образце свинцово-литиевой эвтектики.

1. Образовавшийся гелий диффундирует в материале, доходит до свободной поверхности эвтектики и безактивационным способом покидает ее.

2. Тритий ведет себя в эвтектике иначе: атом трития диффундирует до свободной поверхности эвтектики подобно гелию, однако выделение его с поверхности происходит только в случае ассоциации с другим атомом трития после образования молекулы  $\text{T}_2$ .



3. Выражение для баланса атомов гелия в образце за время эксперимента можно записать следующим образом:

$$\frac{dN_{\text{He}}}{dt} = R_{\text{He}} - \varphi_{\text{He}}. \quad (3)$$

Для трития:

$$\frac{dN_{\text{T}}}{dt} = R_{\text{T}} - \varphi_{\text{T}}, \quad (4)$$

где  $\frac{dN_{\text{He}}}{dt}$ ,  $\frac{dN_{\text{T}}}{dt}$  – скорость изменения атомов гелия и трития в объеме образца, моль/с;  $R_{\text{He}}$ ,  $R_{\text{T}}$  – скорости наработки атомов гелия и трития в объеме образца, моль/с;  $\varphi_{\text{T}}$ ,  $\varphi_{\text{He}}$  – измеренные в эксперименте потоки газов из образца, зависящие от концентрации данных газов в образце эвтектики, моль/с.

4. Поток атомов гелия из образца  $\varphi_{\text{He}}$  равен скорости изменения количества атомов гелия на поверхности образца, которая в свою очередь прямо пропорциональна концентрации атомов гелия в объеме образца и зависит от константы  $k_{V_{\text{He}}}$ , отвечающей за скорость выхода атомов гелия из объема эвтектики на поверхность:

$$\varphi_{\text{He}} = k_{V_{\text{He}}} N_{\text{He}}^V. \quad (5)$$

Предположение о пропорциональности потока гелия из образца концентрации атомов гелия в объеме образца было сделано на основе анализа начального участка выделения гелия: как видно из рис. 6 на начальном этапе (пока  $\varphi_{\text{He}}(t) \ll R_{\text{He}}$ ) поток гелия из образца меняется линейно, т. е.:

$$\varphi_{\text{He}}(t) = k_{V_{\text{He}}} N_{\text{He}}^V = k_{V_{\text{He}}} R_{\text{He}} t. \quad (6)$$

5. Для трития, по закону Полани–Вигнера [5] для десорбции второго порядка, поток газа пропорционален концентрации атомов трития на поверхности в квадрате и пропорционален константе  $k_{S_{\text{T}}}$ , (моль<sup>-1</sup>), которая отвечает за скорость его выделения с поверхности эвтектики:

$$\varphi_{\text{T}} = k_{S_{\text{T}}} N_{\text{T}}^S N_{\text{T}}^S. \quad (7)$$

В свою очередь концентрация атомов трития на поверхности эвтектики зависит от концентрации атомов в объеме материала следующим образом:

$$N_{\text{T}}^S(t) = N_{\text{T}}^V(t) k_{V_{\text{T}}} \left( 1 - \frac{N_{\text{T}}^S(t)}{N_{\text{Tmax}}^S} \right), \quad (8)$$

где  $k_{V_{\text{T}}}$  – константа, которая определяет скорость миграции атома трития в объеме образца ( $N_{\text{T}}^V(t) k_{V_{\text{T}}}$  – это выражение для скорости выхода атомов трития на поверхность эвтектики, имеет тот же вид зависимости, что и для гелия); параметр  $\left( 1 - \frac{N_{\text{T}}^S}{N_{\text{Tmax}}^S} \right)$  учитывает степень заполнения поверхности эвтектики

атомами трития, где  $N_{\text{Tmax}}^S$  – максимально возможное количество атомов трития на поверхности эвтектики.

После математических преобразований выражение (8) примет вид:

$$N_{\text{T}}^S(t) = N_{\text{T}}^V(t) \frac{k_{V_{\text{T}}}}{1 + N_{\text{T}}^V(t) \frac{k_{V_{\text{T}}}}{N_{\text{Tmax}}^S}}. \quad (9)$$

6. На начальном этапе (пока  $\varphi_{\text{He}}(t) \ll R_{\text{He}}$ ) концентрация атомов трития в объеме зависит от скорости наработки трития следующим образом:

$$N_{\text{T}}^V(t) = R_{\text{T}}t. \quad (10)$$

И формула (9) примет вид:

$$N_{\text{T}}^S(t) = R_{\text{T}}t \frac{k_{V_{\text{T}}}}{1 + R_{\text{T}}t \frac{k_{V_{\text{T}}}}{N_{\text{Tmax}}^S}}. \quad (11)$$

Тогда выражение для потока трития из образца будет следующим:

$$\varphi_{\text{T}}^S(t) = k_{S_{\text{T}}} \left( R_{\text{T}}t \frac{k_{V_{\text{T}}}}{1 + \left( R_{\text{T}}t \frac{k_{V_{\text{T}}}}{N_{\text{Tmax}}^S} \right)} \right)^2. \quad (12)$$

Для проведения общего моделирования рассмотрено, как рекуррентно с течением времени происходит изменение объемной концентрации атомов гелия и трития в эвтектике.

*Рекуррентный расчет концентрации атомов гелия в объеме литий-свинцовой эвтектики  $\text{Pb}_{83}\text{Li}_{17}$ .*

В начальный момент времени  $t = 0$ , концентрация атомов гелия в объеме эвтектики  $N_{\text{He}_0}^V = 0$ .

Соответственно поток атомов гелия из образца в начальный момент времени:

$$\varphi_{\text{He}_0} = 0. \quad (13)$$

Через определенный промежуток времени  $\Delta t$  (представим его как  $t_1 = 0 + \Delta t$ ) выражение для объемной концентрации атомов гелия в материале имеет вид:

$$N_{\text{He}_1}^V = N_{\text{He}_0}^V + R_{\text{He}}\Delta t - \varphi_{\text{He}_0}\Delta t. \quad (14)$$

Поток гелия из эвтектики равен:

$$\varphi_{\text{He}_1} = k_{V_{\text{He}}} N_{\text{He}_1}^V = k_{V_{\text{He}}} R_{\text{He}}\Delta t. \quad (15)$$

Окончательная формула для рекуррентного расчета объемной концентрации атомов гелия в эвтектике через  $i$  промежуток времени  $t_i = t_{i-1} + \Delta t$  будет следующей:

$$N_{\text{He}_{i+1}}^V = N_{\text{He}_i}^V + R_{\text{He}} \Delta t - \Phi_{\text{He}_i} \Delta t. \quad (16)$$

Рекуррентное выражение для потока:

$$\Phi_{\text{He}_{i+1}} = k_{V_{\text{He}}} N_{\text{He}_{i+1}}^V. \quad (17)$$

*Определение параметров модели выделения гелия из свинцово-литиевой эвтектики*

Для определения значения константы  $k_{V_{\text{He}}}$  был проанализирован график выделения гелия в самом начале эксперимента (рис. 7). Красным цветом обозначена линеаризованная кривая данного участка графика. Из графика видно, что выделение газа происходит линейно по закону:

$$y = bt, \quad (18)$$

где значение коэффициента  $b = 9 \cdot 10^{-15}$  (моль/с<sup>2</sup>) определено из графика.

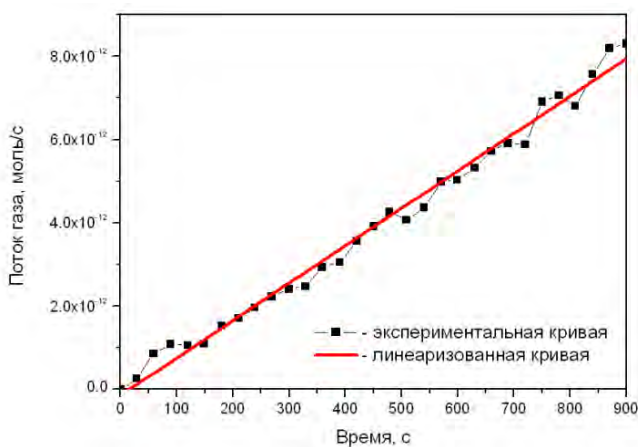


Рис. 7. Начальный участок диаграммы выделения гелия из образца свинцово-литиевой эвтектики

Приравнивая уравнения (15) и (18) и находим выражение для константы  $k_{V_{\text{He}}}$ :

$$k_{V_{\text{He}}} = \frac{b}{R_{\text{He}}}. \quad (19)$$

Значение константы  $k_{V_{\text{He}}}$  было использовано для моделирования кривых выделения гелия из эвтектики.

*Рекуррентный расчет концентрации атомов трития в объеме свинцово-литиевой эвтектики*

В начальный момент времени  $t = 0$ , концентрация атомов трития на поверхности эвтектики  $N_{T_0}^S = 0$ .

Поток трития из образца в начальный момент времени  $\varphi_{T_0}^S = 0$ .

Концентрация атомов трития в объеме образца в начальный момент времени  $N_{T_0}^V = 0$ .

Через определенный промежуток времени  $\Delta t$ , представим его как  $t_1 = \Delta t + 0$ , концентрация атомов трития на поверхности равна (согласно формуле):

$$N_{T_1}^S = N_{T_0}^V \frac{k_{V_T}}{1 + \left( N_{T_0}^V \frac{k_{V_T}}{N_{T_{\max}}^S} \right)}. \quad (20)$$

Поток трития в момент  $t = \Delta t + 0$  равен:

$$\varphi_{T_1}^S = k_{S_T} N_{T_1}^S N_{T_1}^V. \quad (21)$$

Концентрация атомов трития в объеме примет вид:

$$N_{T_1}^V = N_{T_0}^V + R_T - \varphi_{T_1}^S \Delta t. \quad (22)$$

Окончательная формула для рекуррентного расчета объемной концентрации атомов трития в эвтектике через  $i$  промежуток времени  $t_i = t_{i-1} + \Delta t$  будет следующей:

$$N_{T_{i+1}}^V = N_{T_i}^V + R_T \Delta t - k_{S_T} \Delta t \left( N_{T_i}^V \frac{k_{V_T}}{1 + N_{T_i}^V \frac{k_{V_T}}{N_{T_{\max}}^S}} \right)^2. \quad (23)$$

*Определение параметров модели выделения трития из свинцово-литиевой эвтектики*

При малых значениях времени  $t$  выражение (12) примет вид:

$$\varphi_T^S(t) = k_{S_T} \left( k_{V_T} R_T \right)^2 t^2. \quad (24)$$

Для определения значений констант  $k_{V_T}$  и  $k_{S_T}$  был проанализирован график выделения трития в самом начале эксперимента (рис. 8). Жирной линией обозначена линеаризованная кривая данного участка графика. Из графика видно, что выделение газа происходит по квадратичному закону:

$$y = bt^2, \quad (25)$$

где значение коэффициента  $b = 18,8 \cdot 10^{-18}$  моль/с<sup>2</sup> также определено из графика.

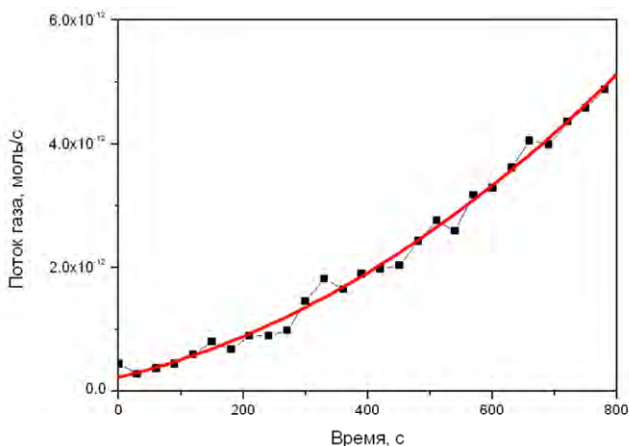


Рис. 8. Начальный участок диаграммы выделения трития из образца свинцово-литиевой эвтектики

Приравнивая уравнения (24) и (25) находим выражения для константы  $k_{V_T}$ :

$$k_{V_T} = \sqrt{b(k_{S_T} R_T^2)^{-1}}. \quad (26)$$

Значение  $k_{S_T}$  варьировалось таким образом, чтобы линейризованная экспериментальная зависимость и зависимость, полученная моделированием выражения  $(N_{T_{i+1}}^V)$  максимально совпали.

В табл. 2, 3 приведены рассчитанные значения скоростей наработки атомов гелия и трития в свинцово-литиевой эвтектике и рассчитанные значения коэффициентов  $k_{V_T}$ ,  $k_{S_T}$  для гелия и трития.

Т а б л и ц а 2

Рассчитанные значения скоростей наработки атомов гелия и трития в эвтектике при мощности реактора 1МВт

$R_{He}$ , моль/с	$R_{T_2}$ , моль/с
$5,799 \cdot 10^{-11}$	$2,89 \cdot 10^{-11}$

Т а б л и ц а 3

Рассчитанные значения коэффициентов  $k_{V_T}$ ,  $k_{S_T}$  для гелия и трития

Коэффициент	Тритий	Гелий
$k_{V_T}$ , 1/с	$2,114 \cdot 10^{-4}$	$1,541 \cdot 10^{-4}$
$k_{S_T}$ , 1/моль	$5,5 \cdot 10^{11}$	—

*Анализ результатов экспериментов по исследованию выделения трития и гелия в зависимости от мощности облучения и температуры образца.*

Как видно из диаграммы реакторных экспериментов выделение трития и гелия имеет сложный характер. Вначале рассмотрим более подробно выделение гелия: на начальном этапе при температуре 573 К и мощности 1 МВт

наблюдается линейный рост поток гелия (причем время измерения выделения гелия на данной температуре не позволило зафиксировать стационарное значение); далее после повышения температуры до 673 К наблюдался пик, который медленно уменьшался до некоторого квазистационарного значения. Та же картина наблюдалась и при повышении температуры образца до 773 К: вначале было пиковое выделение гелия, которое потом снижалось, причем при температуре 773 К при снижении общего уровня выделения гелия относительно первого пика, наблюдались частые пики выделения газа. Подобная картина повторилась при мощностях реактора 2 и 6 МВт с тем отличием, что общий уровень выделения гелия при больших мощностях был выше.

Наблюдаемые особенности выделения гелия понятны: увеличение квазистационарного значения потока выделения гелия от мощности реактора связано с увеличением скорости его наработки в свинцово-литиевой эвтектике; а увеличение квазистационарного значения потока гелия при увеличении температуры образца при одной мощности реактора связано с более быстрым наступлением равновесного состояния процесса выделения гелия при более высокой температуре свинцово-литиевой эвтектики за счет более высокой диффузионной подвижности газа.

Выделение трития, как уже было сказано выше, имеет ряд других особенностей: на начальном этапе при температуре 573 К и мощности 1 МВт наблюдается параболический рост трития; далее после повышения температуры до 673 К наблюдался небольшой пик после чего значения потока трития заметно снизились в сравнении с квазистационарным значением потока трития при температуре 573 К. При повышении температуры образца до 773 К квазистационарное значение потока трития из образца также снизилось (см. диаграмму на рис. 3).

Предполагая, что количество выделяющегося трития пропорционально концентрации свободных атомов трития в эвтектики (формула (8)), можно сделать вывод, что при температурах 673 и 773 К начинается эффективный захват трития в образце, причем ловушками могут выступать атомы лития: при повышенных температурах тритий связывается в тритид лития. За все время эксперимента было наработано не более  $7 \cdot 10^{-7}$  молей трития, что значительно ниже количества атомов лития в исследуемом образце эвтектики и что не предполагает наступления равновесного состояния в выделении трития, а только квазиравновесные состояния. Полагая, что количество захваченных атомов трития можно оценить по формуле:

$$N_{capT} = K_{cap} N_{tot}, \quad (27)$$

где  $N_{capT}$  – равновесное количество захваченных атомов трития;  $K_{cap}$  – константа захвата атомов трития;  $N_{tot}$  – общее количество атомов трития (причем  $N_{tot} = N_{capT} + N_T$ ) то можно определить температурную зависимость константы захвата трития в ловушки:

$$K_{cap}(T, W) = 1 - \frac{\sqrt{\Phi_T(T, W)}}{R_T(W) \sqrt{K_S}}, \quad (28)$$

где  $K_S$  – константа захвата атомов трития (при температуре образца T и мощ-

ности реактора  $W$ );  $\varphi_T(T, W)$  – квазистационарное значение потока трития из образца (при температуре образца  $T$  и мощности реактора  $W$ );  $R_T(W)$  – скорость наработки трития в образце свинцово-литиевой эвтектики при мощности реактора  $W$ .

Рассчитанная константа захвата для различных температур и условий эксперимента приведена в табл. 4 и на рис. 9. По полученным результатам была определена Аррениусовская зависимость для константы захвата трития:

$$K_{cap}(T) = (1,5 \pm 0,8) \exp\left(\frac{6 \pm 1,2}{RT}\right). \quad (29)$$

Таблица 4

Рассчитанные параметры  $K_{cap}$  для различных условий эксперимента

	1 МВт	2МВт	6МВт
573 К	0,62	0,55	0,72
673К	0,68	0,65	0,77
773 К	0,80	0,80	0,86

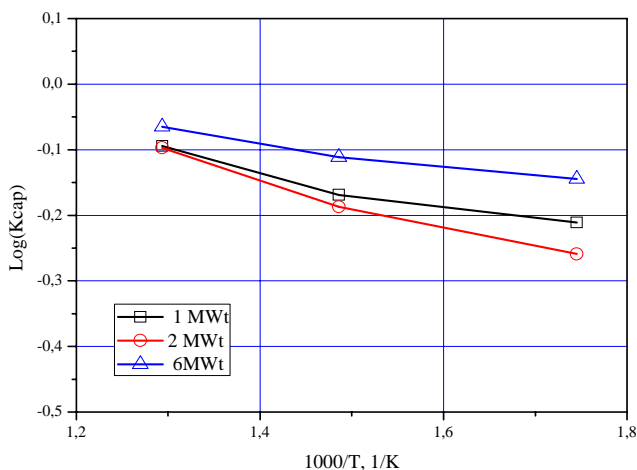


Рис. 9. Температурная зависимость константы захвата трития в образце свинцово-литиевой эвтектики

### Заключение

В результате проведенных исследований были получены временные зависимости выделения гелия и трития из свинцово-литиевой эвтектики в условиях реакторного облучения при различных мощностях реактора и температурах образца.

Для условий облучения были рассчитаны скорости наработки трития и гелия, проведен анализ временных зависимостей выделения этих газов из эвтектики.

По экспериментальным данным был сделан вывод о том, что тритий вы-

деляется в основном в виде молекулы  $T_2$  (~90 %) и некоторое его количество выделяется в виде молекулы НТи тритиевой воды.

Были предложены феноменологические модели для процессов наработки и выделения трития и гелия в свинцово-литиевой эвтектике, с помощью которых удалось хорошо описать экспериментальные данные.

Для модели выделения гелия на основе экспериментальных данных процесс был описан в предположении, что поток гелия с поверхности эвтектики линейно зависит от его объемной концентрации.

Для модели выделения трития процесс был разбит на 2 этапа: первый из которых – выход атомов трития на поверхность, был описан в том же предположении, что и для гелия; а второй этап включал в себя описание процесса десорбции второго порядка с поверхности эвтектики.

Были определены все основные параметры моделей, такие как эффективные коэффициенты выделения атомов гелия и трития на поверхность и эффективная константа скорости десорбции атомов трития с поверхности эвтектики.

### Список литературы

1. Nishikawa M., Baba A., Odoi S., Kawamura H. Tritium inventory estimation in solid blanket system // *Fus. Eng. Des.* 1998. Vol. 39–40. P. 615–625.

2. Nishikawa M., Nakashima N., Hashimoto K., Beloglazov S. Isotope exchange capacity on  $Li_4SiO_4$  and comparison of tritium inventory in various solid breeder blankets // *J. Nucl. Sci. Tech.* 2001. Vol. 38, № 11. P. 944–951.

3. Kudo H., Okuno K. Tritium behavior in blanket system // *J. Nucl. Mater.* 1988. Vol. 155–157. P. 524–529.

4. Malang S., Mattas R. Comparison of lithium and the eutectic lead lithium alloy, two candidate liquid metal breeder materials for self-cooled blankets // *Third International Symposium on Fusion Nuclear Technology*, University of California at Los Angeles, June 27 – July 1, 1994.

5. Elliott J. A. W., Ward C. A. Temperature programmed desorption / J. A. W. Elliott, C. A. Ward // *J. Chem. Phys.* 1997. Vol. 106. P. 13–18.