

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНЫХ ТЕМПЕРАТУРНО-ВРЕМЕННЫХ РЕЖИМОВ ПЕРЕРАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ В ТИТАНЕ ДЛЯ ПОСЛЕДУЮЩЕГО ЕГО ЗАХОРОНЕНИЯ

А. В. Стеньгач, А. И. Тарасова, В. Н. Голубева, И. М. Миронова

РФЯЦ – Всероссийский научно-исследовательский институт
экспериментальной физики, г. Саров, Россия
steng3@dep19.vniief.ru

Введение

Оборудование, работающее непосредственно в контакте с тритием, а также конструкционные элементы ядерных реакторов, например, бериллиевые блоки замедлителей и отражателей нейтронов, в процессе эксплуатации насыщаются тритием. При их замене они подлежат утилизации как высокоактивные отходы. Стоимость захоронения высокоактивных отходов достаточно высокая. Конструкционные элементы иногда имеют достаточно сложные и объемные конфигурации. Компактирование их весьма проблематично, а иногда и невозможно. Это относится к бериллиевым блокам ядерных реакторов [1].

Для снижения активности отходов и перевода их в разряд низкоактивных иногда бывает достаточно провести термическую детритизацию конструкционных материалов. Выделяющийся в процессе детритизации газообразный тритий предлагается сорбировать с помощью «ловушек», содержащих гидридообразующий металл.

Наиболее подходящим и дешевым гидридообразующим металлом является губчатый титан, полученный магнетермическим методом.

При сорбировании трития титановой «ловушкой» может образовываться как фаза титана с растворенным тритием ($TiT_{0,2}$), так и фаза дитритида титана ($TiT_{1,6-2,0}$) или смесь этих двух фаз. Появление фазы дитритида титана в титановой «ловушке» недопустимо, так как из фазы дитритида при достижении атомного отношения а. о. $He_{обр}/Ti > 0,3$ (3–4 года хранения) начинает выделяться газообразный радиогенный гелий-3 [2, 3], что может привести к разгерметизации контейнера (титановой «ловушки»), предназначенного для захоронения в «могильниках» высокоактивных отходов.

С целью недопущения образования фазы дитритида титана предполагается провести термическую нормализацию титановой «ловушки» и приведение степени насыщения не превышающей а. о. $T/Ti = 0,2$. В этом случае не будет достигаться критическая концентрация гелия в твердой фазе тритида титана (а. о. $He_{обр}/Ti > 0,3$) и, соответственно, выделения гелия-3 в газовую фазу в значительных количествах наблюдаться не будет.

Термическая нормализация подразумевает нагрев и выдержку при повышенных температурах в течение определенного времени.

В данной работе представлены результаты выбора оптимальных температурно-временных режимов выдерживания титан-тритиевых «ловушек» для образования тритида состава $TiT_{0,2}$.

Результаты и обсуждение

В качестве исходного материала использовался губчатый титан, приготовленный магниетермическим способом. Титановый порошок имел малую долю примесей. Так суммарная массовая доля примесей магния, алюминия, железа, никеля и хрома не превышала 0,2 %.

Все опыты были проведены на модифицированной стеклянной установке Сивертса при давлениях ниже 100 КПа. Тритий для проведения опытов получали путем термического разложения тритида титана. При этом объемное содержание трития в газовой фазе составляло 98 %, остальное – дейтерий и протий.

Были проведены опыты по поглощению трития термически активированным порошком титана в режиме подвода газа с одной стороны («тупиковый вариант») и с проходом газа через прессованный (50 % пор) порошок титана. Начальное давление трития в этих опытах составляло не выше 33 КПа, а конечное давление не превышало 3 КПа.

Рентгенофазовый анализ послойного среза «ловушки» показал, что идет послойное насыщение титанового порошка, запрессованного в «ловушку», и необходимо перераспределение поглощенного трития.

Эксперименты по перераспределению трития проводили в следующей редакции: на дно кварцевого стаканчика засыпали порошок дитритида титана, имеющего состав $TiT_{1,97}$, далее устанавливали фильтр из пористого молибдена, на который помещали таблетку из порошка титана, спрессованную до относительной плотности 50 %. Удельное газосодержание порошка губчатого титана составляло не более $7 \text{ см}^3/\text{г}$. Соотношение масс дитритида титана и титана было выбрано таким образом, чтобы после термической нормализации получился тритид титана состава $TiT_{0,2}$.

Кварцевую ампулу откачивали до давления не превышающего $1 \cdot 10^{-2}$ Па. Затем откачку ампулы перекрывали и начинали нагрев образцов в замкнутом объеме со скоростью, не превышающей $15 \text{ }^\circ\text{C}/\text{мин}$, до заданной температуры. Далее образцы выдерживали при температуре 350, 400 и 500 $^\circ\text{C}$ в течение 0,5; 1; 2; и 3-х ч при каждой температуре. После выдержки температуру ампулы снижали до комнатной и проводили рентгенофазовый анализ как порошка тритида титана, так и титановой таблетки. Результаты рентгенофазового анализа представлены в табл. 1 и 2 соответственно.

Рентгенофазовый анализ проводили на дифрактометре ДРОН-20 с использованием излучения $Co_{K\alpha}$. Степень насыщения тритидной фазы титана оценивали по величине периода кристаллической решетки.

Таблица 1

Фазовый состав порошка тритида титана

Время выдержки, ч	Температура прогрева, °С		
	350	400	500
0,5	TiTi _{1,6}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}
1,0	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}
2,0	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}
3,0	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}

Таблица 2

Фазовый состав таблетки титана

Время выдержки, ч	Температура прогрева, °С		
	350	400	500
0,5	TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}
1,0	TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}
2,0	TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}
3,0	TiTi _{0,2}	TiTi _{1,6} ; TiTi _{0,2}	TiTi _{0,2}

Поскольку порог обнаружения фаз титана и тритида титана с помощью рентгенофазового анализа не превышает 5 % масс., было проведено определение удельного газосодержания трития в таблетке титана. Удельное газосодержание в титане определяли путем сплавления его с медью при температуре 1300 °С.

Результаты представлены в табл. 3.

Таблица 3

Удельное газосодержание в таблетке титана после прогрева

Время выдержки, ч	Удельное газосодержание, см ³ /г		
	Температура прогрева, °С		
	350	400	500
0,5	11	30	39
1,0	18	30	39
2,0	20	35	40
3,0	23	40	40

Из результатов, представленных в табл. 1, 2 и 3, следует, что перераспределение газа происходит при всех температурах, а равномерное перераспределение – только при температуре 500 °С в течение не менее часа. При этом степень насыщения всей массы титана соответствует а. о. T/Ti = 0,17.

Выводы

Для равномерного распределения трития в титановой «ловушке», предназначенной для захоронения, необходимая температура нагрева составляет 500 °С и время выдержки при этой температуре не менее часа.

Работа выполнена при поддержке проекта МНТС № 3381.

Список литературы

1. Scaffidi-Argentina F. Tritium and helium release from neutron irradiated beryllium pebbles from the EXOTIC-8 irradiation // Proceedings of the 21-st Symposium on Fusion Technology. September 11–15, 2000. Madrid, Spain.
2. Родин А. М., Суренянц В. В. ЖФХ. 1971, № 40. С. 1004.
3. Beavis L. C. Metal Tritides Emission. SAND – 0649. 1980.