УДК 621.039.55

ОЦЕНКА ВЫДЕЛЕНИЯ ГЕЛИЯ И ТРИТИЯ ИЗ ТВЕРДОЙ ФАЗЫ СВИНЦОВО-ЛИТИЕВОЙ ЭВТЕКТИКИ Li15,7Pb ПРИ ЕЕ ОБЛУЧЕНИИ НА РЕАКТОРЕ ИВГ.1М

Тулубаев Е.Ю., Понкратов Ю.В., Гордиенко Ю.Н., Бочков В.С., Букина О.С., Самарханов К.К.

Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Работа посвящена изучению выделения гелия и трития из твердой фазы нового материала свинцово-литиевой эвтектики (Li15,7Pb) в условиях реакторного излучения. Представлены основные характеристики нового материала, изучена его микроструктура. Приведено сравнение микроструктур эвтектик Li15,7Pb и Pb17Li. Рассчитана длина свободного пробега и скорости наработки гелия и трития в исследуемом материале. Проведена оценка выхода гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики Li15,7Pb и приведено сравнение с экспериментальными данными, полученными в реакторных экспериментах.

Введение

Как известно, проблема получения трития как топлива для термоядерных реакторов остается актуальной и в настоящее время. Получить тритий можно из литийсодержащего материала благодаря следующим ядерным реакциям [1, 2]:

$${}_{3}^{7}\text{Li} + {}_{0}^{1}n = {}_{2}^{4}\text{He} + {}_{1}^{3}\text{H} + {}_{0}^{1}n - 2,48 \text{ M} \Rightarrow \text{B}, \qquad (1)$$

$$Li^{6} + n = He^{4} + T + 4,78 M \mathfrak{B}.$$
 (2)

В настоящее время в мире эта тематика широко изучается и имеется значительный объем экспериментальных данных как относительно процессов наработки трития в литийсодержащих материалах, так и о механизмах его выделения [3, 4].

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 [5–7].

Важными процессами в механизме выделения гелия и трития из материала являются диффузия изотопа к поверхности и его выход из приповерхностного слоя за счет собственной энергии. Данный выход можно наблюдать при облучении эвтектики в твердом фазовом состоянии.

Исследования, описанные в данной работе, посвящены изучению механизмов образования ионов трития и гелия в приповерхностном слое свинцово-литиевой эвтектики Li15,7Pb при ее облучении на реакторе ИВГ.1М; изучению процесса бездиффузионного выхода из эвтектики ионов трития за счет собственной высокой энергии. Приведены расчеты длины пробега ионов гелия и трития в исследуемом образце. Рассчитана скорость наработки трития в свинцоволитиевой эвтектике при облучении на реакторе ИВГ.1М. На основании полученных данных выполнена расчетно-теоретическая оценка выделения трития и гелия из приповерхностного слоя нового материала свинцово-литиевой эвтектики Li15,7Pb.

1 ИССЛЕДУЕМЫЙ ОБРАЗЕЦ

Свинцово-литиевая эвтектика Li15,7Pb (в атомных долях 15,7% лития и 84,3% свинца) является принципиально новым материалом и обладает определёнными характеристиками, отличающимися от других литиевых эвтектик (см. таблицу 1).

Таблица 1. Характеристики образца Li15,7Pb

Плотность (г/см³) при температуре			Температура плавления,	Содержание водорода в образие
20 °C	250 °C	350 °C	°C	ррт
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 газовыделения в условиях нагрева образца в вакууме до температуры 1100 °C (нагревались образцы массой 0,01 г и 0,1 г).

Состав свинцово-литиевой эвтектики представлен в таблице 2. Предполагается, что данное процентное соотношение свинца к литию значительно повысит выделение трития из эвтектики в условиях реакторного излучения.

Таблица 2. Состав свинцово-литиевой эвтектики с плотностью 9,56 г/см³

Изотоп	Массовая доля, %
Pb	84,3
⁶ Li	1,01
7Li	14,69

Перед проведением экспериментов по наработке и выделению гелия и трития из образцов Li15,7Pb были проведены работы по характеризации изготовленных образцов, которые включали в себя микроструктурные исследования. Для изучения строения образцов был применен метод сканирующей электронной микроскопии (СЭМ JSM-6390, Jeol). СЭМ-изображения получены по результатам регистрации вторичных электронов при ускоряющем напряжении 20 кВ в диапазоне увеличений от 40 крат до 500 крат.



Рисунок 1. Микрофотография образца эвтектики Pb17Li, ×500



Рисунок 2. Микрофотография образца эвтектики Li15,7Pb, ×500

На рисунках 1 и 2 представлены микрофотографии образцов эвтектики Pb17Li и Li15,7Pb. Для образца Pb17Li (рисунок 1) характерна пластинчатая форма зерен эвтектики. Направление темных полос указывает на то, что на изображении видны торцы пластинок. Расстояния между пластинами сопоставимы с их толщиной. У данных пластин также имеется преимущественное направление. При рассмотрении в режиме обратно отраженных электронов на образце Li15,7Pb (рисунок 2) видны две области: светло-серого и более темного оттенков. Область более светлого оттенка представляет собой матрицу из свинца, тогда как темные участки – эвтектику дендритной (разветвлённой) формы. Критериями образования такой фазы является низкая энтропия при плавлении, концентрационно-температурные условия роста кристалла, наличие примесных центров роста и их адсорбция к атомам лития.

Можно отметить, что такая незначительная разница содержания лития в образцах Li15,7Pb и Pb17Li сильно повлияла на микроструктуру, что, в свою очередь, должно сказаться и на параметрах взаимодействия изотопов водорода с литиевой эвтектикой, а именно, на генерации и выделении трития из исследуемой эвтектики.

Эксперименты по исследованию наработки и выделению трития и гелия из образцов свинцово-литиевой эвтектики (Li15,7Pb) проводились с использованием экспериментального стенда ЛИАНА на ядерном реакторе ИВГ.1М [8]. На рисунке 3 представлена 3D-модель стенда ЛИАНА, подробное описание экспериментального стенда представлено в [9]. Для проведения реакторных экспериментов со свинцово-литиевой эвтектикой Li15,7Pb было разработано и создано специальное ампульное устройство (АУ) (рисунок 4).



ФКЭ; 2 – масс-спектрометры; 3 – высоковакуумные насосы;
 4 – форвакуумный насос; 5 – азотная ловушка; 6 – водородный фильтр;
 7 – емкость для спектрально чистого водорода; 8 – вакуумные вентили

Рисунок 3. 3D-модель стенда ЛИАНА



1 – корпус ампулы; 2 – кожух охлаждения; 3 – нагреватель; 4 – эвтектика; 5 – термопары; 6 – теплоизоляция; 7 – труба подачи азота; 8 – заглушка

Рисунок 4. Экспериментальное AV с образцом свинцоволитиевой эвтектики Li15,7Pb

2 Условия и методика проведения экспериментов

2.1 Условия проведения экспериментов

– остаточное давление в измерительном вакуумном тракте – 10^{-6} торр;

 температура экспериментальной ячейки АУ с образцом свинцово-литиевой эвтектики 200 °С;

масса свинцово-литиевой эвтектики – 68,4 г;

стационарный уровень тепловой мощности реактора – 6 МВт.

2.2 Методика проведения экспериментов

Методика проведения реакторных экспериментов заключалась в следующем:

 АУ с исследуемым образцом загружалось в экспериментальный канал реактора ИВГ.1М, таким образом, чтобы исследуемый образец располагался на уровне центра активной зоны реактора;

 перед выходом реактора на заданный уровень тепловой мощности объем АУ и измерительного тракта стенда ЛИАНА были откачены до давления порядка 10⁻⁶ торр;

 затем реактор ИВГ.1М выводился на заданный стационарный уровень тепловой мощности – 6 МВт;

 после установления мощности реактора на заданном стационарном уровне проводился ступенчатый нагрев и охлаждение образца свинцово-литиевой эвтектики в исследуемом интервале температур. Регулировка и поддержание температуры образца осуществлялась за счет изменения расхода газообразного азота продуваемого между чехлом охлаждения и корпусом экспериментальной ячейки АУ;

 на всем протяжении нагрева и охлаждения исследуемого образца проводилась непрерывная регистрация изменения парциального давления газов в объеме АУ с исследуемым образцом с помощью масс-спектрометра RGA-100.

3 Результаты экспериментов

В соответствии с вышеописанной методикой был проведен реакторный эксперимент, в результате которого были получены данные о выделении газов из исследуемого образца свинцово-литиевой эвтектики в твердом и жидком фазовом состоянии (см. рисунок 5). Анализируя данную диаграмму можно сказать, что при переходе исследуемого образца в жидкое фазовое состояние выделение гелия и трития значительно увеличивается. В данном случае выделение идет как благодаря процессам диффузии, так и за счет собственной высокой энергии в отличие от твердого фазового состояния, где выделение идет только за счет высокой энергии образовавшихся частиц из приповерхностного слоя.

В данной работе рассматривается только выделения гелия и трития из твердого фазового состояния свинцово-литиевой эвтектики. На рисунках 6 и 7 представлен временной участок диаграммы эксперимента, соответствующий выделению гелия и трития из твердой фазы исследуемого образца. Из представленных рисунков видно, что выделение гелия в твердом фазовом состоянии более чем на порядок превышает выделение трития. Это объясняется тем, что тритий в отличии от инертных атомов гелия взаимодействует с другими химическими элементами, образуя различные химические соединения, а также может взаимодействовать с поверхностью экспериментальной ампулы, что, в свою очередь, уменьшает уровень регистрируемого потока трития выделяющегося из образца свинцово-литиевой эвтектики.



обозначения газов на диаграмме соответствует следующим соединениям: M2 – H2, M3 – HD, M4 – D₂; M5 – DT; M6-T₂; M12 – C; M14 – N; M28 – CO; M32 – O₂; M44 – CO₂

Рисунок 5. Диаграмма реакторного эксперимента с образцом свинцово-литиевой эвтектики на мощности 6 MBm



Рисунок 6. Диаграмма реакторного эксперимента выделения трития из исследуемого образца свинцово-литиевой эвтектики

Для лучшего понимания экспериментальных данных ниже описан механизм образования и выделения трития из исследуемого образца свинцово-литиевой эвтектики, находящегося в твердом фазовом состоянии.



Рисунок 7. Диаграмма реакторного эксперимента выделения гелия из исследуемого образца свинцоволитиевой эвтектики

4 Скорость наработки трития и гелия в свинцово-литиевой эвтектике

После выхода реактора на мощность происходит ядерная реакция ⁶Li с нейтронами (1) и (2) и, как следствие, идет образование α-частицы и трития.

Изотоп лития ⁶Li характеризуется большим сечением (n, α)-реакции на медленных нейтронах. Реакция ⁶Li(n, α)Т относится к экзотермическим реакциям, в которой освобождается около 4,8 МэВ энергии. В результате реакции α -частица и ядро трития разлетаются с кинетическими энергиями $E\alpha = 2,05$ МэВ и Е $\gamma=2,74$ МэВ. Сечение (n, α)-реакции на ⁶Li для медленных нейтронов описывается законом 1/ ν . При энергии нейтронов $E_0 = 0,025$ эВ сечение (n, α)-реакции природного лития ⁶Li составляет 945 барн, для изотопа ⁷Li – 0,0033 барн.

Для расчета скорости наработки трития в литийсодержащих материалах применяется следующая формула:

$$R_{\rm 0T} = v_{\rm 6_{Li}} \cdot \sum_{i} \varphi_{i} \cdot \sigma_{i}, \qquad (3)$$

где R_{0T} – скорость наработки гелия в эвтектике, моль/с; v_{6Li} – количество вещества ⁶Li в материале, моль; σ – усредненное сечение взаимодействия, барн (см. рисунок 8); φ – поток нейтронов, 1/см² с (см. таблицу 3).

Таблица 3. Поток нейтронов в центре активной зоны реактора ИВГ.1М на мощности 6 МВт

Энергетическая группа	Нейтронный поток 1/(см²·с)	Интегральный поток	
до 0,67 эВ	(0,87±0,06)·10 ¹⁴		
от 0,67 эВ до 0,1 МэВ	(0,42±0,03)·10 ¹⁴	(1,5±0,1) · 10 ¹⁴	
от 0,1 МэВ до 10 МэВ	(0,22±0,01)·10 ¹⁴		

На основании вышеприведенных данных и формулы (3) была рассчитана скорость наработки трития (см. таблицу 4).



Рисунок 8. Зависимость сечения реакции ⁶Li(n,t)⁴He от энергии нейтронов

Таблица 4. Зависимость скорости наработки трития от мощности реактора ИВГ.1М

Мощность	Поток нейтронов φ, 1/м²·с	Скорость наработки трития, R₀т, моль/м³с		
1 МВт	1,67·10 ¹⁹	-		
2 МВт	3,33·10 ¹⁹	_		
3 MBт	5·10 ¹⁹	_		
6 МВт	1·10 ²⁰	5,96·10 ⁻⁵		

5 Оценка выделения гелия и трития из приповерхностного слоя эвтектики

Образовавшиеся атомы гелия и трития обладают значительной энергией (2,05 и 2,74 МэВ, соответственно), следовательно, под воздействием данной энергии они могут покинуть образец свинцово литиевой эвтектики (гелий в виде атомов, тритий в виде молекул Т2, НТ). На основании данного явления и происходит процесс выделения гелия и трития из исследуемого образца свинцово-литиевой эвтектики.

Для описания процесса выделения данных газов необходимо определить толщину приповерхностного слоя, которую они преодолевают за счет своей начальной энергии от ядерной реакции. Толщина приповерхностного слоя равна половине длины свободного пробега ионов гелия и трития в исследуемых материалах. Длина свободного пробега была определена с помощью программы LISE++ на основании формулы Бете-Блоха (см. рисунок 9, 10) [10, 11]:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi n Z^2 e^4}{mv^2} \left(\ln \frac{2mv^2}{I(1-v^2/c^2)} - \frac{v^2}{c^2} \right),\tag{4}$$

где m – масса электрона; c – скорость света; v – скорость частицы; $\beta = v/c$; Z – заряд частицы в единицах заряда позитрона; n – плотность электронов в веществе; I – средний ионизационный потенциал атомов вещества среды, через которую проходит частица.

Физический смысл этой формулы в следующем: образовавшаяся частица с определённой энергией, пролетая сквозь вещество, «расталкивает» атомные электроны своим кулоновским полем. За счет этого частица постепенно теряет энергию, а атомы либо ионизируются, либо возбуждаются. Растеряв свою энергию, частица останавливается. Сама пролетающая частица при столкновении с отдельным электроном мало отклоняется от своего пути из-за ее большой массы (сравнительно с массой электрона). К тому же и эти малые отклонения почти целиком компенсируют друг друга при огромном числе хаотически ориентированных столкновений. Поэтому траектория частицы в веществе практически прямолинейна.



Рисунок 9. Длина свободного пробега трития в свинцово-литиевой эвтектике



Рисунок 10. Длина свободного пробега гелия в свинцово-литиевой эвтектике

Рассчитав длину свободного пробега, была произведена оценка выделения гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики.

Оценка потока трития и гелия из приповерхностного слоя литийсодержащих материалов производится по следующей формуле [12]:

$$\Phi(t) = \frac{\lambda}{2} S_0 R_{\rm He} \Delta t, \qquad (5)$$

где $R_{\rm He}$ – скорость наработки трития в приповерхностном слое в условиях реакторного излучения, моль/м³с; S_0 – площадь приповерхностного слоя образца, м²; $\lambda/2$ – длина приповерхностного слоя, м; Δt – промежуток времени, с.

По формуле (5) было рассчитано выделение гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики (см. рисунок 11).



Рисунок 11. Диаграмма выделения гелия и трития из приповерхностного слоя образца свинцово-литиевой эвтектике (рассчитанное и экспериментальное значение при мощности реактора 6 MBm)

Как видно из диаграммы, отношение экспериментальных и расчетных данных для выделения гелия составляет 1,03, тогда как отношение экспериментальных и расчетных данных для трития отличается на порядок. Таким образом, можно сделать вывод, что для лучшей интерпретации данных по выделению газов из твердого фазового состояния свинцоволитиевой эвтектики в условиях реакторного излучения необходимо рассматривать выделение по гелию.

Заключение

В результате проведения данной работы были получены кинетики выделения гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики, находящейся в твердом фазовом состоянии, в условиях реакторного излучения. Как известно, выделение данных газов в твердом фазовом состоянии происходит за счет собственной высокой энергии, причем выделение гелия превышает выделение трития на порядок. Это объясняется тем, что тритий в отличие от инертных атомов гелия взаимодействует практически со всеми элементами, образуя различные химические соединения, также может взаимодействовать с поверхностью экспериментальной ампулы, что, в свою очередь, уменьшает регистрируемый поток трития из образца свинцово- литиевой эвтектики.

Для лучшего понимания данных процессов была проведена оценка выделения гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики в условиях реакторного излучения. На основе проведённой оценки было рассчитано выделение гелия и трития из приповерхностного слоя свинцово-литиевой эвтектики Li15,7Pb и приведено сравнение с экспериментальными данными. Полученные результаты, показали, что для лучшей интерпретации выделения газов из твердой фазы свинцово-литиевой эвтектики в условиях реакторного излучения необходимо рассматривать выделение по гелию.

Работа была выполнена в рамках грантового финансирования исследований МОН РК № АР05131677/ ГФ5 Эвтектика.

Литература

- Nishikawa, M. Isotope exchange capacity on Li4SiO4 and comparison of tritium inventory in various solid breeder blankets / M. Nishikawa, N. Nakashima, K. Hashimoto, S. Beloglazov // J. Nucl.Sci.Tech. – 2001. – Vol. 38, № 11. – P. 944–951.
- Kudo, H. Tritium behavior in blanket system / H. Kudo, K. Okuno // J. Nucl. Mater. 1988. Vol. 155–157. Р. 524–529.
 Расчетные оценки энерговыделения и скоростей наработки 3H, 4He в литиевой КПС при ее облучении на реакторе
- 5. Расчетные оценки энерговыделения и скоростей нараоотки SH, чне в лигиевой КПС при ее облучений на реакторе ИВГ.1М / И.В. Прозорова, М.К. Скаков, И.Л. Тажибаева, Ю.В. Понкратов, Т.В. Кульсартов // Вестник НЯЦ РК.– 2018.– № 1.– С. 91-96. ПF = 0,145, Каз БЦ, 2017.
- 4. Наработка трития в литиевой керамике и Li2TiO3 для бланкета термоядерного реактора / Т.В. Кульсартов, И.Л. Тажибаева, Е.А. Кенжин // ВАНТ. Серия: Термоядерный синтез. – 2008. – Вып. 2. – С. 3–12.
- Hiroshi Kudo, Kenji Okuno. Kinetics and mechanism of tritium release from neutron-irradiated Li2O. Journal of Nuclear Materials. 1985. Vol. 133–134. P. 192-195. https://doi.org/10.1016/0022-3115(85)90132-1.
- Beckman I.N et. al. Diffusion of tritium generated in lithium metatitanate Li2TiO3 during thermal neutron irradiation in reactor WWR-K / VANT. Series: Thermonuclear fusion. 2009. Vol. 2. P. 83–92. DOI: 10.21517/0202-3822-2009-32-2-83-92.
- Study of tritium and helium generation in lithium-containing materials and their release Zh.A. Zaurbekova, A.A. Sitnikov, T.V. Kulsartov, I.L. Tazhibayeva, Yu.V. Ponkratov, V.S. Gnyrya, G. Kizane Problems of Atomic Science and Technology, Series Thermonuclear Fusion 2018, V. 41. P. 14–25
- R. A. Irkimbekov, L. K. Zhagiparova, V. M. Kotov, A. D. Vurim, V. S. Gnyrya. Neutronics Model of the IVG.1M Reactor: Development and Critical-State Verification. Atomic Energy. 2019, Vol. 127, Issue 2, pp 69–76. https://doi.org/10.1007/s10512-019-00587-1.
- Ю.Н. Гордиенко, Т.В. Кульсартов, Ж.А. Заурбекова, Ю.В. Понкратов, В.С. Гныря, Н.Н. Никетенков. Применение метода водородной проницаемости в реакторных экспериментах по исследованию взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами. Известия Томского Политехнического Университета: Математика и механика. Физика [Бюллетень Томского Политехнического Университета: Математика и механика. Физика] 324 (2014) 149–162.
- 10. V. Matveev, Emission of charged clusters during metal sputtering by ions, 322 Tech. Phys. 45 (8) (2000) 1063–1069.
- 11. O. Tarasov, D. Bazin, LISE++: radioactive beam production with in-flight 324 separators, Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B. 266 (19–20) (2008) 4657–4664.
- Тулубаев Е.Ю., Исследование процессов выделения ионов гелия из приповерхностного слоя литийсодержащих материалов ТЯР / Тулубаев Е.Ю, Понкратов Ю.В., Кульсартов Т.В. Вестник НЯЦ РК [и др.] // Вестник НЯЦ РК – 2014 – выпуск 3. – с. 94–101.

ИВГ.1М РЕАКТОРЫНДА СӘУЛЕЛЕНУ ЖАҒДАЙЫНДА Li15,7Pb ҚОРҒАСЫН-ЛИТИЙ ЭВТЕКТИКАСЫНЫҢ ҚАТТЫ ФАЗАЛЫҚ КҮЙІНЕН ГЕЛИЙ МЕН ТРИТИЙДІҢ БӨЛІНУІН БАҒАЛАУ

Е.Ю. Тулубаев, Ю.В. Понкратов, Ю.Н. Гордиенко, В.С. Бочков, О.С. Букина, К.К. Самарханов

ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Бұл жұмыстағы зерттеулер реакторлық сәулелену жағдайында жаңа Li15.7Pb литий-қорғасын эвтектикасы қатты фазалық күйіндегі гелий мен тритийдің бөлінуін зерттеуге арналған. Жаңа материалдың негізгі қасиеттері мен оның микроқұрылымы сипатталған. Li15.7Pb және Pb17Li эвтектикалардың микроқұрылымдарының салыстыруы келтірілген.

Қорғасын-литий эвтектикасы үлгісінің үстіңгі қабатынан гелий мен тритийдің еркін жүрісінің ұзындығы есептелген. ИВГ.1М реакторында сәулелену кезінде бұл материалдағы гелий мен тритийдің қалыптасу жылдамдығы анықталды. Li 15,7 Pb қорғасын-литий эвтектикасының үстіңгі қабатынан тритий мен гелийдің бөлінуіне бағалау жүргізілді және реакторлық эксперименттерде алынған эксперименталдық деректермен салыстыру келтірілген.

ESTIMATION OF HELIUM AND TRITIUM RELEASE FROM THE Li15.7Pb LEAD-LITHIUM EUTECTIC IN THE SOLID PHASE STATE UNDER IRRADIATION AT THE IVG.1M REACTOR

Ye.Yu. Tulubayev, Yu.V. Ponkratov, Yu.N. Gordienko, V.S. Bochkov, O.S. Bukina, K.K. Samarkhanov

Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The studies described in this paper are devoted to the study of helium and tritium release formation in the solid phase state of new Li15.7Pb lithium-lead eutectic under irradiation. The paper describes the main properties of the new material and its microstructure. The comparison of microstructures of eutectic Li15.7Pb and Pb17Li is given.

Helium and tritium free path length in the near-surface layer of the lead-lithium eutectic sample were calculated. The rate of helium and tritium formation in this material during its irradiation at the IVG.1M reactor has been determined. Estimation of helium and tritium release formation from the near-surface layer of the Li15.7Pb lithium-lead eutectic has been done and a comparison with experimental data obtained in in-pile test has been presented.