

ӘОЖ 621.039.5.51

¹А.А. Куйкабаева, ²И.Н. Бекман, ²И.М. Бунцева, ³И.Л. Тажибаева

¹Әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті, Қазақстан, Алматы қ.

²Ломоносов атындағы Мәскеу мемлекеттік университеті, Ресей, Мәскеу қ.

³ҚР Ұлттық ядролық орталығы Атом энергия институты, Қазақстан, Курчатов қ.

ВВР-К реакторындағы нейтрондармен сәулелендіру процесінде Li₂TiO₃ метатитанат литийден туындайтын тритийдің диффузиясы

Метатитанат литийге айнымалы термиялық әсер бар кезде литий-6-ның нейтрондармен ядролық реакциясы нәтижесінде туындайтын тритийдің бөлінуін зерттейтін реакторлық тәжірибенің нәтижесін талдаудың математикалық және программалық қамтамасыз етілуі ұсынылды. Титанат литий гранулаларының тритийлі бридерде қолданылуға жарамдылығын бағалауға қажетті газбөлінуінің негізгі шамалары есептелінді: газбөлінуінің үлесі, тритийді материалда ұстауы, ұстау уақыты, T⁺-тің көлемдік диффузиясы және НТ термодесорбциясының белсенділік энергиясы, осыларға сәйкес келетін тәжірибе алдындағы күшейткіштер. Тритийдің диффузиялық коэффициенті реакторлық сәулелендірудің тек алғашқы 10 айында белсенді ұлғаятыны, осыдан кейін эффективті диффузия коэффициенті $1,3 \cdot 10^{-7}$ см²/сек мәнінде тұрақтанып өзгермейді немесе өте әлсіз өзгеріске ұшырайды.

Түйін сөздер: термоядролық реактор, бланкет, тритийдің туындауы, тритийдің диффузиясы, литийлі керамика, нейтрондық сәулелену, радиациялық ақаулар.

А.А. Куйкабаева, И.Н. Бекман, И.М. Бунцева, И.Л. Тажибаева

**Диффузия трития, генерируемого в метатитанате лития Li₂TiO₃
в процессе облучения тепловыми нейтронами в реакторе ВВР-К**

Предложено математическое и программное обеспечение реакторных экспериментов, которое позволило интерпретировать результаты экспериментов по изучению выделения трития, непрерывно генерируемого в результате ядерной реакции лития-6 с тепловыми нейтронами при наличии переменных термических воздействий на метатитанат лития. Рассчитаны основные параметры газовой выделения, необходимые для оценки пригодности гранул из титаната лития для использования их в тритиевых бридерах: доля газовой выделения, удержание трития в материале, время удержания, энергии активации термодесорбции НТ и объемной диффузии T⁺, а также соответствующие им предэкспоненциальные (частотные) множители. Показано, что коэффициент диффузии трития активно увеличивается только первые 10 месяцев реакторного облучения метатитаната лития, затем эффективный коэффициент диффузии стабилизируется на значении примерно $1,3 \cdot 10^{-7}$ см²/сек и в дальнейшем не меняется или меняется очень слабо.

Ключевые слова: термоядерный реактор, бланкет, наработка трития, диффузия трития, литиевая керамика, нейтронное облучение, радиационные дефекты.

A.A. Kuykabayeva, I.N. Bekman, I.M. Buntseva, I.L. Tazhibayeva,

**Difusion of tritium, generated in lithium methanetitanate Li₂TiO₃
in process of warm neutron radiation in WWRK reactor**

Automation and processing software was developed for interpretation of the results of reactor experiments on tritium release study. Tritium was continuously generated as a result of nuclear reaction of lithium-6 and thermal neutrons under variable thermal impacts on lithium metatitanate. Main gas release parameters, which are necessary for

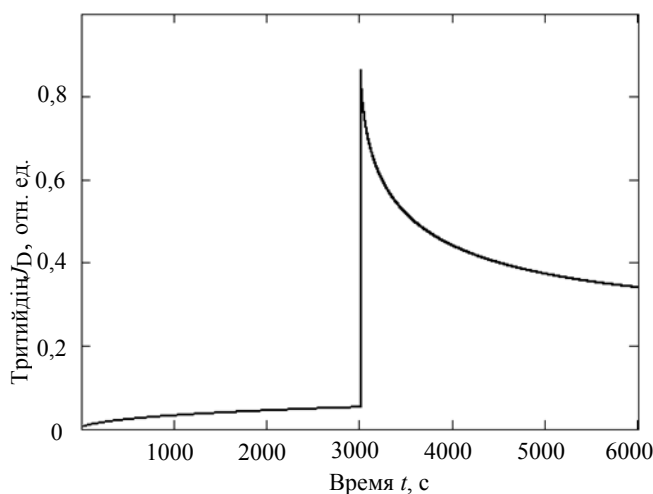
assessment of applicability to use the lithium titanate granules in tritium blankets, were calculated: tritium retention/release ratio, retention time, activation energy of HT thermodesorption, activation energy of T^+ bulk diffusion, and corresponding pre-exponential (frequency) factors. It was shown that tritium diffusion coefficient was actively increasing during first 10 months of reactor irradiation of lithium metatitanate, then effective diffusion coefficient stabilized at the value of $1.3 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{s}$ and afterwards the coefficient didn't change or changed insignificantly.

Key words: fusion reactor, blanket, tritium generation, tritium diffusion, lithium ceramics, neutron irradiation, radiation defects.

Кіріспе

Алдыңғы [1–4] жұмыстарда жазылғандай ВВР-К реакторында 96% литий-6 изотобымен байытылған Li_2TiO_3 ($\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\% \text{ mol TiO}_2$) литийлік керамикасын жылулық нейтрондармен ұзақ уақыт (5350 сағат, 15 кампания, тәжірибе ұзақтығы екі жылдай) сәулелендіру кезіндегі Li_2TiO_3 –дан тритийдің бөлінуі мен туындауы зерттелді. Литийдің жану деңгейі 23% болады. Тәжірибе барысында титанат литийден бөлінетін тритийдің ағыны мен температурасы үздіксіз және автоматты түрде өлшенеді. Шеңбер түріндегі үлгінің дегазациясы диффузияның классикалық механизмі (Фиктің диффузия заңына және Генридің ерітінді заңына бағынатын) 1-ші ретті шекаралық жағдайдағы көздерді (ядролық реакция есебінен туындау) және 1-ші ретті шекаралық жағдайдағы стоктар (тритийдің радиоактивті ыдырауы) есепке ала отырып қарастырылды.

Диффузия салдарынан қатты денеден тритийдің бөлінуіне қатысты есептерді шешуге Фиктің 2-ші заңын қолданғанда төмендегідей бірнеше қиындатылған жағдайларды ескеру керек:



1-сурет. Ядролық реакция кезіндегі шеңберден үздіксіз шығатын тритий ағынының диффузия коэффициентін сатылы өзгерткендегі уақытпен байланысы (математикалық модельдеу, сатылы қыздыру, $D_1 = 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{s}$, $D_2 = 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{s}$, $r_0 = 0,1 \text{ cm}$)

- ядролық реакция кезінде тритийдің пайда болуы (көздің болуы);
- тритийдің радиоактивті ыдырауы (сток);
- тритийдің беттік қабатпен бірігуі (қалыңдығы атомның еркін жол ұзындығына тең).

Реакторлық сәулелендіру үрдісіндегі литий керамика үлгісінен тритий ағынының өзгеруі

Үлгінің температурасы сатылы өзгергендегі шеңберден шыққан газ ағынының өзгеруін қарастырамыз. Диффузиялық тендеуді литийдің біркелкі таралуын ескере отырып материал көлемімен 1-ші ретті шекаралық жағдайда шешеміз. (1-сурет).

Керамика үлгісін сатылы қыздыру. Шеңбер тәрізді керамика үлгісінде тритий үзіліссіз және біркелкі бөлінеді. t_1 уақытта үлгі T_1 температурада ұсталынады. Содан кейін үлгі температурасы T_1 мәнінен T_2 –ге көтеріліп t_2 уақыт бойы ұсталынады және т.с.с. T_1 -ден T_2 -ге қыздырған кезде диффузия коэффициенті D_1 шамасынан D_2 шамасына өзгереді де газдың ағыны да бірден жоғарылайды. (мұндағы $T_1 < T_2$, ал $D_1 < D_2$). Газбөліну ағыны T_2 «жаңа» температурада екі компоненттен тұратынын ескеру керек: Ағыны D_2 диффузия коэффициентімен басқарылатын T_2 температурада туған жаңа молекулалар:

$$J_2(t) = SQ \left[\frac{r_0}{3} - \frac{2r_0}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_2 t}{r_0^2} \right\} \right], \quad (1)$$

мұндағы J_2 [атом/с] – T_2 температураға бөлінетін тритий атомының толық ағыны, $S = 4\pi r_0^2$ [cm^2] – шеңбер грануланьың беттік ауданы; r_0 [см] – шеңбер радиусы; Q [атм/($\text{cm}^3 \cdot \text{s}$)] – көз қуаты (газдың бөліну жылдамдығы) және T_2 температурада шеңберден белсенді шығатын T_1 температурада туған t_1 1-ші уақытта бөлініп үлгермеген «ескі» молекулалар (диффузиясы D_2 коэффициент диффузиясымен басқарылады).

Шеңберден шығатын осындай типті молекулалар ағыны

$$J_1(t) = \frac{2 \langle C_{T_1} \rangle S D_2}{r_0} \sum_{n=1}^{\infty} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_2 t}{r_0^2} \right\}, \quad (2)$$

мұндағы $\langle C_{T_1} \rangle$ [атом/см³] бірінші жақындаудағы t_1 уақыттағы T_1 температураға үлгіні қыздырғандағы орташа концентрациясы:

$$\langle C_{T_1} \rangle = \frac{r_0^2 Q}{D_1} \left(\frac{1}{15} - \frac{6}{\pi^4} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_1 t_1}{r_0^2} \right\} \right). \quad (3)$$

Егер T_1 температурада t_1 ұстау уақыты диффузияның тұрақты стационарлы жағдайын қалыптастыратындай жеткілікті үлкен болса,

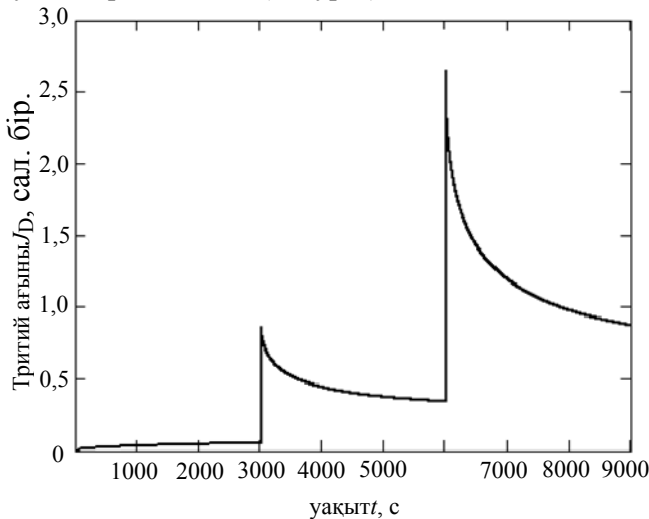
$$\langle C_{T_1, \infty} \rangle = \frac{r_0^2 Q}{15 D_1}, \quad (4)$$

есептеуді жеңілдетеді.

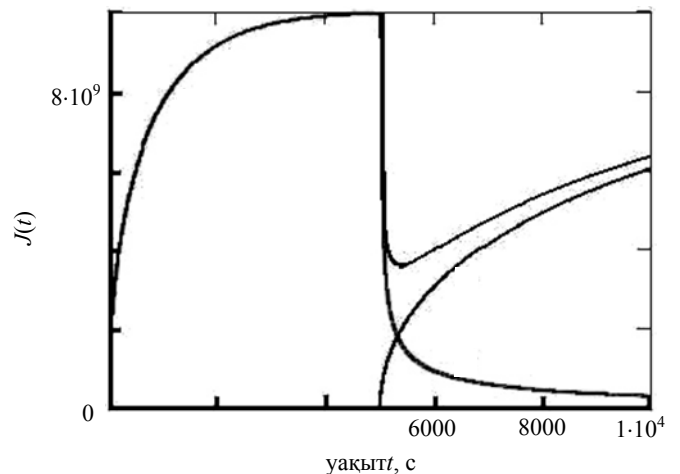
T_2 температурадағы шеңберден шығатын тритийдің ағыны келесі теңдеумен сипатталады:

$$J(t) = J_1 + J_2 = S Q \left[2 r_0 \frac{D_2}{D_1} \left(\frac{1}{15} - \frac{6}{\pi^4} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_1 t_1}{r_0^2} \right\} \right) \sum_{n=1}^{\infty} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_2 t}{r_0^2} \right\} + \left[\frac{r_0}{3} - \frac{2 r_0}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_2 t}{r_0^2} \right\} \right] \right], \quad (5)$$

мұндағы $D_1 - T_1$ температурадағы газдың диффузия коэффициенті, $D_2 - T_2$ температурадағы t_1 үлкен уақыт аралығында. (2- сурет).



2-сурет. Үлгіні сатылы қыздырғанда шеңберден тритийдің бөлінуі. (келесі шамадағы математикалық модельдеу: $D_1 = 10^{-9}$ см²/с, $D_2 = 10^{-8}$ см²/с, $D_3 = 10^{-7}$ см²/с, $r_0 = 0,1$ см)



3-сурет. Үлгіні сатылы қыздырғанда шеңберден тритийдің бөлінуі (Грануланың алдыңғы температуралық деңгейінде тритий толығымен шықпаған: $D_1 = 10^{-9}$ см²/с, $D_2 = 10^{-8}$ см²/с, $D_3 = 10^{-7}$ см²/с, $r_0 = 0,1$ см): 1 – жоғары температурадағы тритийдің ағыны T_1 ; 2 – T_2 температурадағы ағын ($T_2 < T_1$) – тритийдің пайда болуы жоқ кездегі; 3 – $T_2 - T_1$ температурадағы ағын тритийдің бөлінуі бар; 4 – тритий бөлінуінің қосынды қисығы

$$J(t) = \frac{2Sr_0Q}{15} \frac{D_2}{D_1} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right\} + SQ \left[\frac{r_0}{3} - \frac{2r_0}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right) \right] \quad (6)$$

немесе

$$J(t) = QV \left(1 + \frac{2}{5} \frac{D_2}{D_1} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right\} - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right\} \right), \quad (7)$$

Мұндағы $V = (4/3)\pi r_0^3$ – шеңбер гранула ауданы.

Егер $t = t_2$ болса T_2 температурада жеткілікті жоғары болса газдың тұрақты ағыны орнайды

$$J = QV. \quad (8)$$

T_1 температурадан T_2 температураға көшкенде шеңберден шыққан газ ағыны T_1 заңы бойынша өзгереді:

$$J(T_1, t) = SQ \left[\frac{r_0}{3} - \frac{2r_0}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_1 t}{r_0^2}\right\} \right] \quad (9)$$

T_2 заңға дейін:

$$J(t) = QV \left(1 + \frac{2}{5} \frac{D_2}{D_1} \sum_{n=1}^{\infty} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right\} - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{n^2\pi^2 D_2 t}{r_0^2}\right\} \right). \quad (10)$$

Келесі T_3, T_4, T_5 т.с.с. температураны сатылы қыздырғанда осы формула тұрақты газ ағынының іс-әрекетін сипаттайды.

T_2 температурадағы ағында тек диффузия коэффициенті ғана емес D_2/D_1 қатынасы кіреді, өйткені сатылы қыздыру тәжірибесін жеке D_1 және D_2 – ні табу мүмкін емес.

Мысал ретінде 3 - суретте температура ұлғайғанда ядролық реакция барысында шеңберден бөлінетін тритий ағынының уақытпен өзгеруі көрсетілген. Алдымен ағын тұрақты мәнге ұмтыла ұлғаятыны көрініп тұр. (ішінше, диффузия коэффициенті). Температура жылдам өсу кезінде ағын бірден ұлғаяды, содан кейін бірінші температуралық деңгейдегі

мәніне дейін түседі. Температураның келесі жылдам өсу кезінде тағы да ағынның алдыңғыдан да көп өскені байқалады.

Біздің ойымызша, келесі температуралық саты толығымен дегазирленіп кетеді. Егер үлгіде тритий жеткілікті болса келесі температуралық сатыдағы газбөлінуіне тигізетін әсері айтарлықтай болады. Ағынның бұлай жүруі диффузия коэффициентін есептеуге мүмкіндік бермейді.

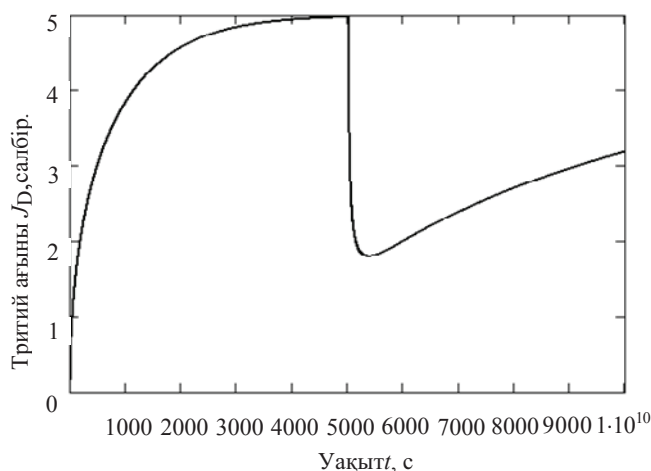
Сәулелендіру кезіндегі литий керамикасын сатылы суыту. Енді үлгіні сатылы суытқандағы тритий ағынының іс - әрекетіне көңіл бөлеміз. Мұнда $T_1 < T_2, D_1 > D_2$, газды ұстау уақытының айырмашылығы

$$\Delta\tau = \tau_2 - \tau_1 = \frac{\langle C_{T_2} \rangle - \langle C_{T_1} \rangle}{Q}. \quad (11)$$

Математикалық аппарат кішкене өзгерістерді енгізілгені болмаса солай қала береді.

Егер T_1 – жеткілікті жоғары болса және t_1 уақыты жеткілікті ұзақ болса шеңберде газ болмайды да яғни, $\langle C_{T_1} \rangle = 0$ және ізінше, $\Delta\tau = \frac{\langle C_{T_2} \rangle}{Q}$. Бұл жағдайды әлденеше оңайлатады. T_2 кезінде тритийдің ағыны келесі заңмен өзгереді

$$J_2(t) = SQ \left[\frac{r_0}{3} - \frac{2r_0}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ -\frac{n^2 \pi^2 D_2 t}{r_0^2} \right\} \right], \quad (12)$$



4-сурет. Алдыңғы температуралық сатыда пайда болған тритийдің қатысуымен шеңберден үздіксіз бөлінуі (сатылысуыту)

Титанатлитийдің кристалл торымен тритийдің диффузия коэффициентін анықтау

Литий керамикасын термоциклдеу кезінде нейтронның әсерінен литийден үздіксіз бөлінетін тритийдің тәжірибелік мәндерін өңдеуде алдыңғы тақырыптағы математикалық аппарат қолданылды. Грануланың дегазациясы жоғары болғандағы НТ және T_2 бөлінуінің мәндері метатитанат литийдің кристаллдық торындағы тритонның (T^+) диффузия коэффициентіне ауыстырылып сатылы қыздыру мәндерімен дәлме-дәлденді.

Жұмыста классикалық диффузия моделі бойынша алынған нәтижелерді өңдеу реакторда

D_2 диффузия коэффициентін табуға көмектеседі.

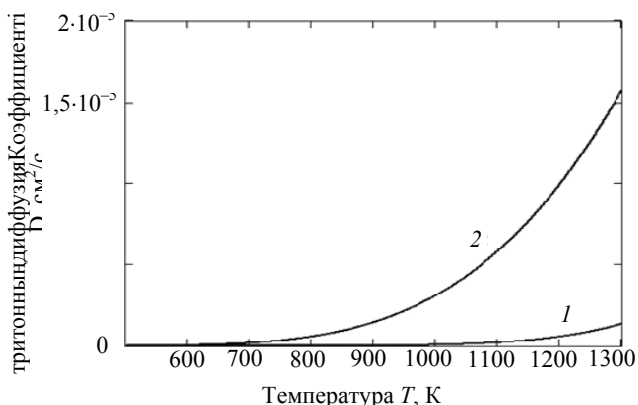
4 - суретте температураның сатылы төмендеуі кезінде шеңберден шығатын тритий ағынының өзгеруі көрсетілген. Температура бірден ауысқанда ағын бірден төмендейтіні көрінеді. Жеке дегазацияны (яғни, неғұрлым жоғары деңгейдегі тритийдің болуы) есепке алу температура өзгертін аумақтағы ағынның біркелкі түсуіне әкеледі. (яғни неғұрлым жоғары үлгідегі тритийдің болуы).

бір жыл литий керамикасын сәулелендіру кезінде диффузияның белсенділік энергиясы айтарлықтай төмендегені қатты дене матрицасындағы тритон (T^+) диффузиясы және тритийдің (НТ және T_2) үлгіден бөлінуі жүзеге асатын потенциалдық шұңқырлардың тереңдігінің азаюын көрсетеді. Бұл кезде диффундирлейтін тритийге қақпан болып әсер ететін экспоненциалындағы (энтропиялық) көбейткіш шамасының да азаюы диффузияға қол жетімді диффузиялық жолдардан азаюына куәлік болады.

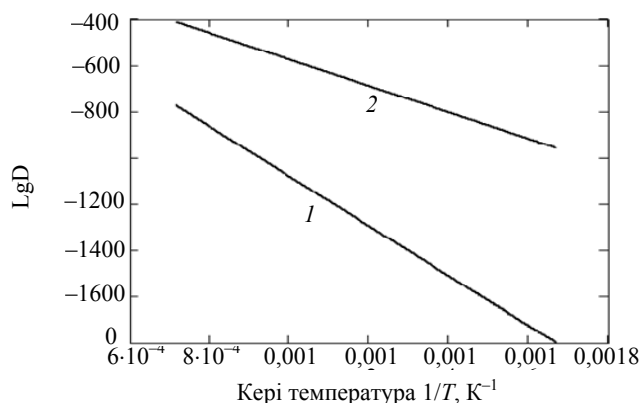
Біздің ылғидағыдай тритийдің көлемдік диффузиясының температуралық байланысын Аррениус заңымен сипаттаймыз:

$$D(T) = D_0 \cdot \exp \left(-\frac{E_D}{RT} \right), \quad (13)$$

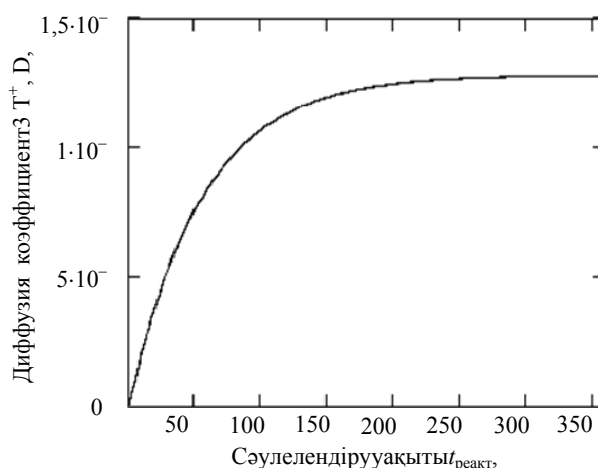
мұндағы $D(T)$ – T температурадағы тритийдің диффузия коэффициенті; E_D диффузияның активті энергиясы; $R = 8,3144$ Дж/(моль·К) – газ тұрақтысы; T – температура, К.



5-сурет. Жанудың әртүрлі сатысындағы ${}^6\text{Li}$ - нитридийдің диффузия коэффициентінің литий керамикасы көлемімен температуралық байланысы: 1 – алғашқы реакторлық сәулелендіру кампаниясы; 2 – алғашқы реакторлық сәулелендіру кампаниясы



6-сурет. 5-сурет мәндерінің аррениустік координатадағы қисығы



7-сурет. Реакторлық тәжірибе кезіндегі метатитанат литийдегі тритийдің диффузия коэффициентінің уақытпен шамалы байланысы

Диффузия коэффициентінің $T^{\#}$ аррениустік байланыстағы шамаларын бағалау келесі мәндерді берді $D_{01} = 0,1 \text{ см}^2/\text{с}$ и $E_{D_1} = 130 \text{ кДж/моль}$ литийдің алғашқы жану сатысына арналған (реакторлық тәжірибелердің алғашқы кампанияларында) $D_{02} = 0,006 \text{ см}^2/\text{с}$ және $E_{D_2} = 69 \text{ кДж/моль}$ соңғы кампанияларда. Реактордағы тритийлі керамиканың болуы тритийдің белсенділік энергиясының екі есеге кемуді және диффузия көбейткішінің экспоненциалының (энтропиялы) екі есеге және

диффузия трития почти в два раза и уменьшению тритий диффузиясының экспоненция алды екі есеге (энтропиялық) төмендеуіне әкелді.

5-суретте тритий жануының екі сатысына арналған диффузия коэффициентінің температуралық байланысы графикалық түрде келтірілген. 6-суретте олардың аррениустік масштабы көрсетілген. Әртүрлі температурада әр уақыттағы сәулелендіру кезіндегі метатитанат литийдің диффузия коэффициентінің кейбір мәндері 1-кестеде келтірілген.

1-кесте – Өртүрлі температурада әр уақыттағы сәулелендіру кезіндегі метатитанат литийдің диффузия коэффициентінің кейбір мәндері.

Реакторлық сәулелендіру кезіндегі алғашқы кампаниялар		Реакторлы сәулелендірудегі соңғы кампаниялар	
T, °C	Диффузия коэффициенті	T, °C	Диффузия коэффициенті
300	$1,35 \cdot 10^{-13}$	300	$3,0 \cdot 10^{-9}$
500	$1,59 \cdot 10^{-10}$	500	$1,28 \cdot 10^{-7}$
700	$1,02 \cdot 10^{-8}$	700	$1,17 \cdot 10^{-6}$

Енді реакторлық тәжірибе барысында тұрақты температурада тритийдің диффузия коэффициентінің өзгеру сипаттамасын жартылай

бағалауға болады (литийдің жануы). 500°C температурада бұндай байланысты бірінші жақындауда эмпирикалық формуламен өрнектеледі:

$$D(t_r) = 1,59 \cdot 10^{-10} + 1,28 \cdot 10^{-7} [1 - \exp(-0,018 \cdot t_r)], \quad (14)$$

мұндағы t_r – литий керамикасының сәулелену уақыты.

Бұл функцияның графигі $D(t_r)$ - суретте көрсетілген. Алдыңғы байланыстан тритийдің диффузия коэффициенті тек алдыңғы он ай белсенді ұлғайып диффузияның эффективті диффузия коэффициенті $1,3 \cdot 10^{-7}$ см²/с мәнінде тұрақтанып өзгермейді немесе аз өзгереді. Диффузия коэффициентінің шектік мәнге жетуі екі қарама - қарсы фактордың әсерінен болады: кристалл торлар түйіндеріндегі литий иондарының жоғалуына әкелу арқылы диффузиялық үрдісті жеңілдететін литийдің жануы; Диффундирлейтін тритийді қақпанға түсіріп ізінше,

диффузиялық үрдісті қиындататын жылдам нейтронның және сыртқы гамма сәулелендіру әсерінен пайда болатын радиациялық ақау.

Тритийді ұстау уақыты мен газбөліну үлесі

Бридер материалы ретінде тритийлі керамиканың жарамдылығын бағалағанда негізгі шама 0 – 1- ге дейінгі грануладан шығатын тритийдің ағынының газбөліну үлесі. 1-ден грануладан тритийдің ағынының тұрақталғаны делінді.

$G(t)$ [атом] t уақыттағы шеңберде қалған газдың мөлшері:

$$G(t) = 4\pi \int_0^{r_0} C(r, t) r^2 dr - \frac{4\pi}{3} r_0^3 C_{(0)} = \frac{8}{\pi} r_0^3 C_{(0)} \left[\frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ - \left(\frac{n\pi}{r_0} \right)^2 Dt \right\} \right], \quad (15)$$

Немесе өлшемсіз түрде

$$g(t) = \frac{G(t)}{G_0} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left\{ - \frac{n^2 \pi^2 Dt}{r_0^2} \right\}, \quad (16)$$

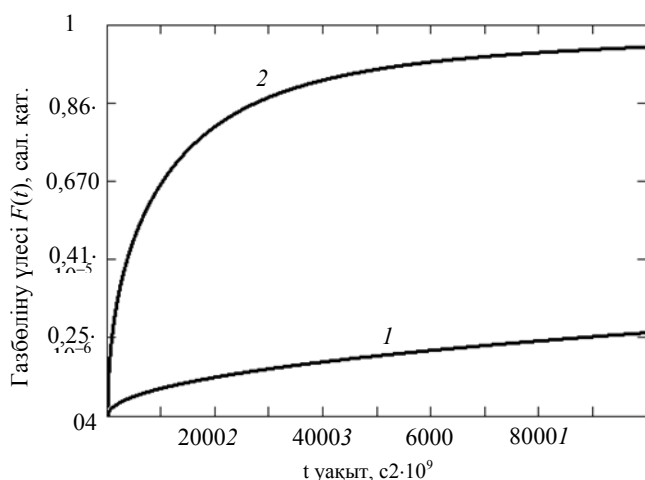
мұндағы G_0 – уақыттың бастапқы кезіндегі үлгідегі газ мөлшері.

Шеңберден t уақыт аралығында бөлінген газ:

$$M(t) = \frac{4}{3} \pi r_0^3 C_{(0)} \left[1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp \left(- \frac{n^2 \pi^2 Dt}{r_0^2} \right) \right]. \quad (17)$$

Газбөлінуінің өлшемсіз үлесі:

$$F = \frac{M_t}{M_0} = 1 - \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left\{-\frac{n^2 \pi^2 D t}{r_0^2}\right\}. \quad (18)$$



8-сурет. 700 °С температурада бөлінген тритий үлесінің сәулелену уақытымен байланысы: 1 – сәулеленудің алғашқы кезеңі; 2 – сәулеленудің соңғы кезеңі $1 \cdot 10^{10}$

диффузия коэффициентінің шамасына (яғни материал құрылымы және үлгі температурасы), гранула радиусіне және литий керамикасында тритийдің бастапқы пайда болуына кеткен уақытқа байланысты.

8 - суретте мысал ретінде реакторлық тәжірибенің бастапқы және соңғы сатыларына арналған (тұрақты мәннен үлес бойынша) 700 °С температурасындағы тритийдің бөліну үлесінің уақытқа байланыстылығы көрсетілген. Тритийдің пайда болуымен тритий ағыны уақыттың өсуімен тұрақты мәнге талпынады. Температура мен диффузия коэффициенті жоғарылағанда грануладан шыққан тритийдің

Тритийдің шеңбердегі орташа концентрациясы:

$$\langle C \rangle = C_{(0)} \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^2} \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D t}{r_0^2}\right); \quad (19)$$

$$F(t) = 1 - \frac{6r_0^8}{\pi^4 D t} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} (1 - \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2 D \cdot t}{r_0^2}\right)) \quad (20)$$

ағыны тұрақты мәнге тезірек ұмтылады. Сәулелендірудің соңғы сатысында ағын тұрақтылығы алдыңғы сатыларға қарағанда тезірек орнады.

700 °С температурадағы сәулеленудің алғашқы сатысында тритийдің диффузия коэффициенті $1,02 \cdot 10^{-8} \text{ см}^2/\text{с}$, $t = 1$ сағат уақытта газбөліну үлесі (тұрақты күйден пайызы) 13,1%, соңғы сатыдағы дәл осы температурадағы диффузия коэффициенті $1,168 \cdot 10^{-6}$ және $t = 1$ сағатта бөліну үлесі 84,4%. Сонымен біздің реакторлық тәжірибеде, 500 °С-тан жоғары тритийдің литийлі керамика грануласынан тұрақты бөлінуі басталғаннан кейін бірнеше сағаттан бірнеше сағаттан кейін тұрақтанды.

Материалды бридер материалы ретінде қолдану тритийді керамикада ұстау уақыты τ -ға негізделген. Пайда болған тритий грануладан қаншалықты аз уақыт болса осы температурада, осы уақытта оны шығару дәрежесі жоғары болады және керамиканың бридер материалы ретінде құрылымы да жақсырақ. Ұстау уақытын келесі формуламен есептейді:

$$\tau(T) = \frac{r_0^2}{15 \cdot D(T) \cdot 3600 \cdot 24} (\text{сут}). \quad (21)$$

Мысал ретінде 2-кестеде ұстау уақытының кейбір мәндері келтірілген.

2-кесте – τ [күн] әр түрлі температурада әр сатыдағы титанат литийдегі литий - 6 жануындағы тритийді ұстау уақыты

Температура, °С	Жағу сатысы	
	бастапқы	соңғы
300	$5,7 \cdot 10^4$	2,6
500	48,7	0,06
700	0,76	$6,6 \cdot 10^{-3}$

2 - кестеден біздің тәжірибе жағдайында 1 мм титанат литий грануласында 57 мың сағаттан 300 °С температурада және жанудың алғашқы 10 минутында 700 °С температурада литий-6 жануы 20%. Жоғары температурада тритийді ұстаудың аз уақыты басқарылатын термоядролық синтезді аспаптарда метатитанат литий негізгі бридер материалы ретінде қолданылу тиімділігін куәландырады.

Баспадан шығарылған мәндермен алынған өлшеу нәтижелерін салыстыру

Литий-6 мен жоғары дәрежеде байытылған метатитанат литиймен жүргізілген тәжірибелердің ішінде тритий ағынының тіркелуімен жүргізілетін реакторлық тәжірибе осы уақытқа дейін жасалынбаған. Сондықтан да біздің алған өлшеу нәтижелерімізді басқа жұмыстармен тікелей салыстыру мүмкін емес. Бірақ титанат литийден тритийдің бөліну үрдісіне үлкен көңіл бөлінгендіктен кейбір паралельдерді жүргізуге болады.

Біздің зерттеулерге кішкене жақын болып келетін [5] жұмыс. Бұнда реакторда алдын ала жылы нейтрондармен $4 \cdot 10^{18}$ н/см² үлесіне дейін сәулеленген әртүрлі мөлшердегі титанат литийінің монокристалдарынан (1–2 мм) изотермиялық тритийдің бөлінуі қарастырылған. 250–1100 °С температура аралығындағы газбөліну тритийдің көлемдік диффузиясымен бақыланады. Диффузия коэффициентінің температура шамасымен байланысы: $D_0 = 0,1$ см²/сек и $E_D = 104$ кДж/моль. Біздің үлеске қатысты есептеген мәндеріміз [5] жұмыс мәндерімен өте жақсы сәйкес келеді.

[6] жұмыста үлгіні сызықты қыздыру кезінде ⁶Li және ⁷Li табиғи изотоптары бар титанат литийден тритийдің бөліну үрдісі термодесорбциялық спектроскопия әдісімен қарастырылған. 20–24 сағат бойы гранулаларды вакуумдалған ампулада нейтрондар ағынымен $(2-3,4)10^{13}$ н·см⁻²·с⁻¹ сәулелендірді. Сәулелендіргеннен кейін үлгілерді термодесорбциялық спектроскоптауға және иондауға арналған камераларға ауыстырып 1, 2,5 немесе 5 °С /мин жылдамдықпен сызықты қыздыру жағдайындағы тритий ағынының уақытпен байланысын өлшеу нәтижелерін [7] жұмыстағы авторлармен жазылған математикалық апаратты қолданып өңдедік. Тритийдің интенсивті термодесорбциясы 100-250 °С – тан басталады 370–450 °С

температурада максимумға жетеді де тритийдің ағыны ақырындап төмендейді газбөліну тек 600 °С температурада тоқтайды. Үлгіден шыққан ағын 90% болғанда сутегі (T_2 және НТ молекула), жоғары температурада үлгіден шыққан ағын су молекулалар (НТО молекуласы) түрінде бөлінеді. [6] жұмыс авторларының ойынша олардың алған нәтижелері титанат литийден тритийдің бөлінуі литий керамикасы бетіндегі титанат литийден молизация үрдісімен лимиттенеді. Десорбция моделі аясындағы қисықтардың анализі 2-ші ретті химиялық кинетикаға бағынатын 92 кДж/моль десорбцияның активтілігінің орта энергиясын береді. Литий-6-ның әр кезеңде жануы кезінде өлшенген тритийдің көлемдік диффузиясының белсенділік энергиясының мәні бір интервал аралығында болады: $69 < E_D < 130$ кДж/моль. [8] жұмыста өлшенген десорбцияның жеке көбейткіші, $k_0 = 3 \cdot 10^{15}$ с⁻¹. Бұл диффузия коэффициентімен есептегенде (метатитанат литий торының тұрақтылығын ескергенде 0,415 нм) $D_0 = 5,2$ см²/с шаманы береді де осы жұмыстағы сәулеленудің алдыңғы кезеңіндегі мәні $D_0 = 0,1$, сәулелендірудің соңғы кезеңінде $D_0 = 0,006$ см²/с. Li_2TiO_3 монокристалынан тритийдің реакторлық сәулеленуден кейінгі тритийдің бөлінуін [5] жұмыспен салыстыруға болады. Бұл жұмыста көрсетілгендей тритийдің белсенділік энергиясы тұрақты шама болады да температура ұлғайғанда ұлғаяды (493–533 К температурада 92 кДж/моль-ден 543–583 К температурада 139 кДж/моль-ге дейінгі аралықта болады). Авторлардың ойынша газбөліну термобелсенділігінің кинетикасына жауап беретін үрдіс ретінде тритийді аулау орталығы болып табылатын радиациялық ақаулардан тритийдің бөлінуі жүреді. Тритиймен сәулеленген литийлі керамикадан тритийдің бөліну динамикасына радиациялық ақауларды күйдіру айтарлықтай әсер етеді. [5] жұмыста Li_2TiO_3 , үлгісінің сынғыштығымен байланысты ештеме байқалмады.

[8] жұмыста сатылы қыздыру әдісімен LiAlO_2 -дегі тритий диффузиясының белсенділік энергиясы 141,5 кДж/моль болды, $D_0 = 0,13$ см²/с, ал Li_2O - де температура өсу кезінде тритийді ұстау уақыты 56 кДж/моль белсенділік энергиясымен төмендейді [9]. Айта кетер жағдай, бұл жұмыста алынған D_0 мәні біздің литий титанатты сатылы суыту кезіндегі мәнге өте жақын келеді.

Литийлі керамиканың әр түрлі құрылымдарында тритийдің жағдайы көптеген жұмыстарда қарастырылған, мысалы [10, 11] жұмыстарда. Кристалл торларда тритий әр түрлі диффузия коэффициентімен сипатталатын үш түрде бола алатыны көрсетілді: T^+ , T^0 және H . Тритий литий торында иондармен ауысу қабілетіне ие, ол түйінарасынан өте алатын болса да литийлі вакансияда орналасады. Литийлі вакансияға түскендегі T^+ -дан T^0 қайтақұрылу эффектсі маңызды. Макроақауларда тритийдің микротесік және дислокациясында молекула формасында болатын сияқты. Тритийдің бөлінуі HT және T_2 молекуласы түрінде жоғары температурада жүреді –НТО түрінде.

Өкінішке орай, осы уақытқа дейін литийлі керамикада тритийдің көлемдік диффузиясына нейтронды сәулеленудің әсері туралы түсінік анық емес. Баспадан шығарылған мәндер әзірше керамиканы жылдам нейтрондармен және гамма сәулелендірумен әсеріне қатысты сұрақтарға толығымен жауап бере алмайды

[12]. Беатрис II бөліктік тәжірибеде литийдің 5% жануына дейін Li_2O айтарлықтай өзгерістер болмайды. Осы уақытқа дейін ішкі сәулеленудің литийлі керамикада диффузия коэффициентіне әсерінің механизмі ұсынылмаған.

Бұл жұмыста титанат литий керамикасымен жұтылған жылдам нейтрондардың үлесін есептеуге және сәулелендіру жылы нейтрондармен реакторда жүргізілгеннен жылдам нейтрондардың көлемдік диффузияға әсері есептелмеген. Жылдам нейтрондармен сәулелендіру тритийдің химиялық формасының (T^+ , T^0 немесе T) және тритийдің кристалл торында орналасуында газбөлінуді термобелсендірлену өзгеруінде тритий диффузиясымен тікелей байланысы жоқ басқа үрдістерге әсер етуі мүмкін. Бұл жұмыста ядролық реакция салдарынан туындаған гелийдің литий керамикасындағы тритийдің диффузиялық шамаларына әсері қарастырылмады. Бұл жеке зерттеу нысаны болып табылады.

References

- 1 Tazhibayeva I., Kenzhin E., Chakrov P., Arinkin F., Gizatulin Sh., Becmuhambetov E., Shestakov V., Chihrai E., Kulsartov T., Kuikabaeva A., Kawamura H., Tsuchiya K. Ispolzovanie reactor WWRK dlya dlitelnih radiatsionnih ispitaniil tievoi keramiki Li_2TiO_3 dlya blanketa TYAR. – VANT.CER. Termoyadernicintez, 2007, vyp. 2, c. 3–10.
- 2 Tazhibayeva I., Shestakov V., Kenzhin E., Chihrai E., Kulsartov T., Kuikabaeva A., Bekman I., Chakrov P., Gizatulin Sh., Kawamura H., Tsuchiya K. Narabotkatritia v litievoi keramike Li_2TiO_3 dlya blanketa termoyadernogo reactor–VANT.CER. Termoyadernicintez, 2007, 2008, вып.2, c. 3–12.
- 3 Tazhibayeva I., Chikhray Y., Shestakov V., Kulsartov T., Kykabaeva A., Kawamura H. Measurement System for In-pile Tritium Monitoring from Li_2TiO_3 Ceramics at WWRK. – J. Nucl. Mater., 2007, part 2., vol. 367–370, p.1028–1032.
- 4 Tazhibayeva I., Kulsartov T., Kenzhin E., Makcimkin O., Doronina T.A., Osipov I., Cilnyagina N., Turubarova L., Say K, Zheltov D., Kashirski V., Chihray E., Shestakov V., Kuikabaeva A., Kawamura H., Tsuchiya K. Struktura, sostav isvoistva obluchennoi v reactore WWRK litievoi keramiki Li_2TiO_3 +5% mol. TiO_2 dlya tverdogo keramicheskogo blanketa Termo yadernogo reaktora. – VANT. Ser. Termoyadernicintez, 2008, vyp. 1, c. 3–12.
- 5 Botter F., Mouglin J., Rasneur B., Tistchenko S., Kopasz J. Mechanism of tritium release from lithium ceramics irradiated with neutrons. – In: 16th Symp. on Fusion Technology. Chile, 1990, c. 23–27.
- 6 Oyaidzu M., Morimoto Y., Sasaki M., Kimura H., Munakata K., Nishikawa M., Kawamoto K., Okada M., Okuno K. ESR study on annihilation process of radiation defects induced in solid tritium. – Breeding Materials by Neutron Irradiation, 2004, vol. 108, p. 42–45.
- 7 Abdou M.A., Wittenberg L.J., Maynard C.W. A fusion design study of nonmobile blankets with low lithium and tritium inventories. – Nucl. Techn., 1975, vol. 26, p. 400–419.
- 8 Raffray A.R., Cho S., Abdou M.A. Modeling of tritium transport in ceramic breeder single crystal. – J. Nucl. Mater., 1994, vol. 210, p. 212–220.
- 9 Badawi A., Raffray A.R. Analysis of tritium release from $LiAlO_2$ in the TEQUILA experiment, using the MISTRAL code. – Fus. Eng. Des., 1991, vol. 17, p. 73–78.
- 10 Kawamura H., Tsuchiya K., Nakamichi M., Fujita J., Sagawa H., Nagao Y., Gohar Y., Ikeajima Y., Saito T., Sakurai S., Hisa I., Kumahara H., Nemoto N. Tritium release behavior from lithium titanate pebbles at low irradiation temperature. – In: Proc. of the 20th Symp. on Fusion Technology. – France, 1998, p. 1289–1292.
- 11 Tanufuji T., Yamak I.D., Jitsukawa S. Tritium release from neutron-irradiated Li_2O sintered pellets: isothermal annealing of tritium traps. – J. Nucl. Mater., 2004, vol., p. 1266–1269.
- 12 Stagle O., Kurasawa T., Verrall R., Hollenberg G.W. In-situ tritium recovery from Li_2O and Li_2ZrO_3 irradiated in a fast neutron flux: BEATRIX-II, Phase I and II. – In: Ceramic breeder blanket interactions workshop. 1994, p. 1896–1906.