

УДК 53917

И. Н. БЕКМАН, И. Л. ТӘЖІБАЕВА А.А. КҮЙКАБАЕВА

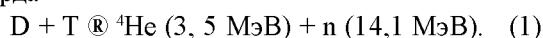
ҰЗАҚ РЕАКТОРЛЫҚ СӘУЛЕЛЕНДІРУДІҢ ТЕРМОЯДРОЛЫҚ РЕАКТОР БЛАНКЕТИНЕ АРНАЛҒАН Li_2TiO_3 ЛИТИЙ КЕРАМИКАСЫНДА ТРИТИЙДІҢ ПАЙДА БОЛУЫ МЕН БӨЛІНУІНЕ ӘСЕРІ

Мақалада тәжірибелінің техникасы мен әдістемесі, зерттеу объектілері сипатталады, ВВР-К реакторындағы зерттеу нәтижелері, Li_2TiO_3 литий титанатынан тритийді бөліп алуға арналып жүргізілген тәжірибелер нәтижелерін талдау, Li_2TiO_3 литий титанатын нұрландыру кезіндегі тритий миграциясы және оның бөліну механизмдері ұсынылына отырып ұзақ реакторлық сәулелендірудің Li_2TiO_3 литийлік керамикадан тритийдің туындауына ықпалы анықталған. Литийкерамикалық материалында тритийдің тасымалдану процесін сипаттайтын математикалық негізгі параметрлері анықталған.

Кіріспе

Бұғынға таңда тритий өндіру үшін қатты денелік бридерлік бланкет ең нәтижелі болып табылады. Тритий алу үшін ең қолайлы материалдар болып Li_2O , Li_2TiO_3 , Li_2ZrO_3 және Li_2SiO_4 есептелеңді. 6Li изотопымен 96%-ке дейін байытылған Li_2TiO_3 литий метатитанат керамикасы (тазасы да титан тотығымен допирленгенде) бланкет үшін де радиациялық беріктілігі тұрғысынан да, тритийді өндіру тұрғысынан да ең қолайлы материал болып есептеледі [1-3]. Li_2TiO_3 артықшылығы – тритийдің босатылуының төменгі температуралар кезіндегі салыстырмалы жоғары жылдамдығы, химиялық және радиациялық беріктігі және т.б. [1].

D-T отында жұмыс істейтін термоядролық реакторда



Реакция нәтижесінде термоядролық нейтрондар (негізгі энергия тасушылар) түзіледі, олар өз кезеңінде плазма көмегімен шығып, бланкеттің литий бар



(2)

реакция өтетін аумағына тиеді.

Бұл кезде тритий түзіліп қана қоймайды, энергия да бөлінеді.

Әдеби мәліметтерді шолу қазіргі кезде тритий туындау процесіне ұзақ реакторлық нұрландырудың ықпалын зерттеуге арнашкілік эксперименттер жүргізуде бірсыныра тәжірибе жинақталғанын көрсетті [7-10].

Бұл жұмыстың мақсаты, литийлік керамика 20% жанып кету деңгейіне дейінгі радиациялық сынауларды, нұрландыру кезінде шығарылатын тритийді тіркеумен қатар жүргізу.

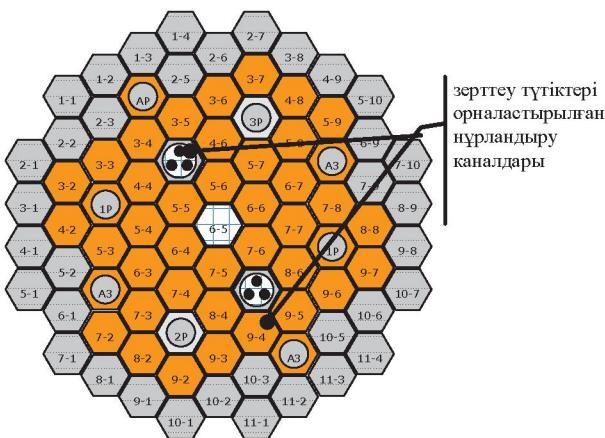
Қазіргі таңда кездесетін жұмыстардың ешқайсысында мұндай ұзақ радиациялық сынаулар жүргізілген жағни ^6Li жанып кетуінің мұндай жо-

ғары деңгейіне қол жеткізілмеген және де 6Li изотопы бойынша 96% байыту деңгейіндегі литийлік керамика қолданылмаған.

Реакторлық эксперименттерді жүргізу әдістемесі

Шариктер мен таблеткалар түріндегі литийлік керамика үлгілерін радиациялық сынаулар ҚР ҰЯО Ядролық физика институтында ВВР-К (Қазақстандық су-сулық реактор, Алматы қаласы маңында орналасқан) реакторда белсенді өнірдің орталық бөлігінде орналасқан екі тік нұрландыру арнасында жүргізілді. Бұл арналардағы нейтрондар ағымының тығыздығы белсенді өнірдің орталық бөлігіндегі езгертілмеген каналда (тәжірибелі тұтіктерсіз) 1,2-1,4 \times 10¹⁴ см⁻²с⁻¹ дейін жетті. үлгілерді нұрландырудың толық уақыты реактордың 6 МВт жылулық қуаты кезінде 5350 сағат (220 тәуліктен артық реактордың компаниянан жалпы саны – 15) жүргізілді. Реактордың эксперимент әдістемесі [11], [12] жұмыстарында жазылған. Литий керамикасының 12 г үлгісі диаметрі ~1 мм шариктер түрінде және 30 дана үлгі диаметрі 8 мм, қалыңдығы 1 мм химиялық құрамы әртүрлі таблеткалар түрінде, 6 сәулелендіру тұтіктеріне салынып сәулелен-дірліді.

Сәулелендіру көрсеткіштерін бақылау мен реттеу және нұрландыру процесінде тритийдің бөліну кинетикасын зерттеу әмбебап тұзактық қондырғы жүйесі (ӘТК) көмегімен жүргізілді. Литийдің жану шамасын бағалау литийлік керамикалық энергия шығаруының калориметрлік әдіспен өлшенген мәнінен алынады. Сәулелендіргіш тұтіктерінің құрылымын онтайлау MPNC кодын пайдаланатын нейтрон-физикалық есептеу әдісімен жүргізілді. ӘТК(УПУ) әр тұтікten газды сорғызуға, тұтіктермен техникалық жүйенің әр түйінін толтыру мен керекті қысымды ұстауға, тұтіктік жинамалардағы радиоактивті газды арнаулы контейнерлерге жи-



1-сурет. Литий керамикалы ампулалардың ВВР-К реакторының белсенді аймағында орналасуы

науға, түтіктерге берер алдында гелийді келтіргіш арқылы өткізу жолымен тазартуға мүмкіндік береді. ӘТҚ құрамына бұлардан басқа мыналар да кіреді: газ қоспасын тритийден тазарту жүйесі, тастама ыдыстарындығы тритий мөлшерін технологиялық

бакылау жүйесі, ақпараттық-өлшеу жүйесі [12].

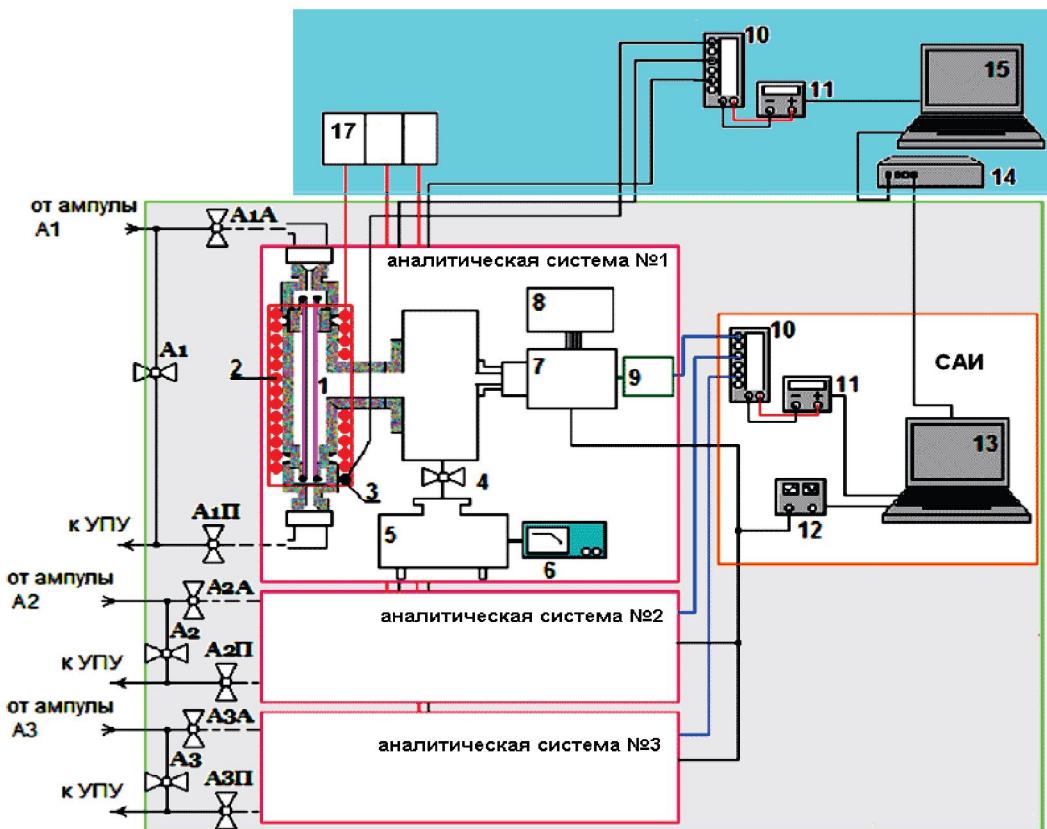
Тритийді тіркеудің автоматтандырылған жүйесі «Сакура» ампулалардың шығысындағы газ қоспасында тритиймен қоса реакторлық эксперимент кезінде түзіліп, изотоп алмастыруға катысадын ілеспе газдарды (HTO , HT , H_2O , T_2O), бір мезгілде үш радиожиіліктік спектрометр көмегімен анықтауға мүмкіндік береді.

Тритий тіркеу жүйесінің жалпы көрінісі 2-суретте бейнеленген.

Li_2TiO_3 литий титанатын нұрландау кезіндегі тритийдің миграциясы және Li_2TiO_3 литий титанатынан тритий туындауы мен пайда болуына ұзақ реакторлық нұрландарудың ықпалы

Тритий өндіру кезінде бланкетте мынадай процестер өтеді [3], [4]:

1. Түйіршік-кристалда тритий түзілуі;
2. Кристалл-түйіршікте тритийдің оның беткі қабатына қарай диффузиясы;



2-сурет. Реакторлық нұрландау кезінде тритийдің литийлік керамикадан шығуын өлшейтін жүйенің жалпы көрінісі: 1 – сутегілік (PdAg); 2 – қыздырығыш; 3 – термоқосақ; 4 – ваккумдақ сорғызы вентилі; 5 – ваккумдық НОРД сорғызы; 6 – сорғыны коректендіру блогы; 7 – РМО-13 (омегатрон); 8 – омегатрондық коректендіру блогы; 9 – электрометр (ЭМУ); 10 – мультиплексор; 11 – вольтметр; 12 – басқарылатын генератор (ПУГ); 13 – басқарығыш компьютер; 14 – hub, 15 – алыстырылған терминал, 17 – қыздырығыштарды басқарушы блок

3. Диффузияланған тритийдің радиациялық ақаулармен әсерлесуі;
4. Тритийдің түйршік бетіне адсорбциясы;
5. Тритийдің түйршік ішінде абсорбциясы;
6. Газ ағынындағы молекулалық сутегі H_2 мен түйршік бетіндегі тритий арасындағы изотоптық алмасу;
7. Газ ағынындағы су буы мен түйршік бетіндегі тритий арасындағы изотоптық алмасу;
8. Үрлеу газына сутегін қосқан кездегі түйршік бетінде су түзілу реакциясы;
9. Материалды құйдіру кезінде пайда болған шекаралық қабат арқылы сутегі мен судың газ ағынына өтуі.

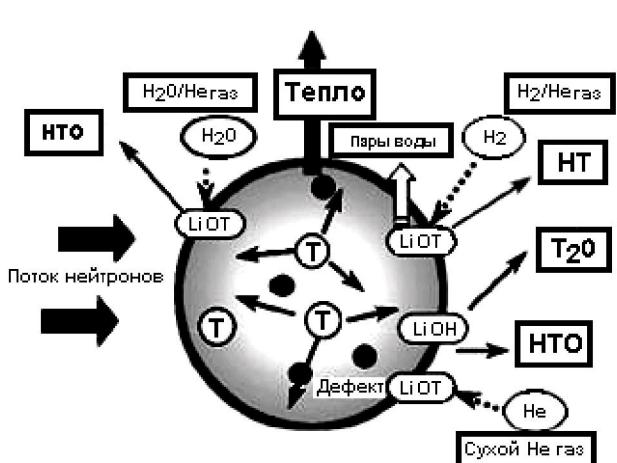
[6] жұмыста Li_2O , $LiAlO_2$, Li_2ZrO_3 және Li_4SiO_4 керамикалық бланкеттерде тритий өндірілуін есептеудің жаңа әдісі ұсынылған. Үлгіде керамика көлеміндегі диффузиядағы тритийдің I_D толық ағынына, түйршіктегі бетіне адсорбция I_{ad} , түйршіктегі көлеміндегі абсорбция I_{ab} және түйршіктегі бетіндегі изотоптық алмасу I_{ex} үлестері ескеріледі.

3-суретте бридерлік материалдан тритий шығарылу процестері сұлбесі бейнеленген.

Тритий туындауының толық ағынын мына тәндеумен өрнектеуге болады:

$$I_{Total} = I_D + I_{ab} + I_{ad} + I_{ex}$$

$$= \frac{G_T d_p^2}{60 D_T} + \frac{Q_{ab} M P_{T_2O}}{(P_{T_2O} + P_{H_2O} + P_{H_2O'})} +$$



3-сурет. Қатты бридерлік материалдан тритийдің бөлінүү [5]

$$+ \frac{Q_{ab} M P_{T_2O}}{\{P_{H_2} / \alpha_{ex} + (P_{T_2O} + P_{H_2O} + P_{H_2O'}) / \alpha'_{ex}\}} +$$

$$+ \frac{Q_{ex} M P_{T_2O}}{\{P_{H_2} / \alpha_{ex} + (P_{T_2O} + P_{H_2O} + P_{H_2O'}) / \alpha'_{ex}\}}, \quad (3)$$

Мұндағы G_T – бланкетте тритий туындалу жылдамдығы (моль/с), d_p – түйршіктегі диаметрі (м), D_T – диффузия коэффициенті (m^2/s), P_{H_2} – үрме газдағы сутегінің үлестік қысымы (Па), P_{H_2O} – үрме газға қосылған су буының үлестік қысымы (Па), M – бланкеттегі литийлік керамика мөлшері (моль), α_{ex} , α'_{ex} – изотоптық алмасудың өндірілу коэффициенттері (өлшемсіз), Q_{ab} – беттегі судың абсорбция коэффициенті (моль H_2O /моль Li), Q_{ad} – судың адсорбция коэффициенті (моль H_2O /моль Li), Q_{ex} – беттегі изотоптық алмасу коэффициенті (моль H_2O /моль Li).

Ұзақ реакторлық сәулелендіру жағдайында литий титанатынан тритийдің туындауы мен шығарылуы процесін **математикалық модельдеу**

Реакторлық нұрландыру процесінде тритийдің шығарылуы мынадай процестер өсебінен өтуі мүмкін:

1. Тритийдің сфералық түйршіктен тебілу әсері өсебінен шығарылуы. Тебілу әсері өсебінен түйршіктен бірлік уақыт ішінде шығарылатын тритий атомдарының санын мына өрнекті пайдаланып бағалауға болады:

$$J_R = C_{Li} \Lambda 4\pi \int_{r_0 - R_t}^{r_0} q(r) r^2 dr. \quad (4)$$

Мұндағы C_{Li} – литийдің сәйкес концентрациясы [атом $\text{Ч}^{-3}\text{см}^{-3}$]; Λ – тритийдің түзілу жылдамдығы түрақтысы ($\Lambda = \Phi s L Sh N \Phi$ – материал көлемінде нейтрондар туындау жылдамдығы [$\text{нейтрЧ}^{-3}\text{с}^{-1}$], s – нейтрондардың литиймен әсерлесуінің тиімді кимасы [см^2], S – бет ауданы [см^2] (сфералық геометриялық бетінің ауданы $S = 4\pi r_0^2$), h – ядролық реакцияның нақты арнамен өтуінің ықтималдығы (негізінен литий изотоптарының арапаспасындағы 6Li изотопының үлесімен анықталады), N – атомдар саны); r_0 – сфералық пішінді түйршіктің радиусы [см] және R_t – тебілген тритийдің зерттелетін материалдағы жүрімі [см]; $q(r)$ – координаты r нүктеде

түзілген тритий атомының тебілу есесінен түйіршіктен ұшып шығуының ықтималдығы.

Интеграл алып тебілген тритий атомдарының сферадан стационар ағынының өрнегін табамыз:

$$J_R = \pi \Lambda C_{Li} \left(r_0^2 R_t - \frac{1}{12} R_t^3 \right). \quad (5)$$

Радиусы r_0 сферада бірлік уақытта туындаитын тритий атомдарының жалпы саны төмендегі формуламен анықталады:

$$G = \frac{4}{3} \pi r_0^3 C_{Li} \Lambda. \quad (6)$$

Сонда тритийдің түзілу жылдамдығына қарай келтірілген (калыптандырылған) тебілген тритий атомдарының ағыны мынаған тәң болады:

$$J_R^* = \frac{J_R}{G} = \frac{3}{4} \frac{R_t}{r_0} - \frac{1}{16} \left(\frac{R_t}{r_0} \right)^3. \quad (7)$$

2. Тритийдің НТО өткен кездеңі шығынын есекеру.

Тритий тебілу есебінен ғана жоғалмайды, ол түз молекуласы құрамындағы оттегімен, судағы оттегімен радиациялық-химиялық реакцияға түсуге немесе OH ион құрамына кіретін немесе кәдімгі судағы протимен алмасуға қабілетті (су мен гидрототықтар тұздарда әркез болады). Тритийді НТО әкетестін химиялық процестер жылдамдығы тұрақтысын $k_x [c^{-1}]$ енгізейік.

$$\begin{aligned} \frac{dC_T(r,t)}{dt} &= \\ &= \Lambda(1-q(r))C_{Li}(r,t) - (k_x + \lambda)C_T(r,t) \end{aligned} \quad (8)$$

немесе

$$\frac{dC_T(r,t)}{dt} = \Lambda_1 C_{Li}(r,t) - \Lambda_2 C_T(r,t). \quad (9)$$

Мұндағы $\Lambda_1 = (1-q(r))$, $\Lambda_2 = k_x + \lambda$, C_{Li} және C_T – сәйкес литий мен тритий концентрациялары [атомЧсм⁻³], 1 – тритийдің ыдырау тұрақтысы [c^{-1}].

3. Тритийдің диффузия есебінен стационарлық бөлінуі.

Егер тритийдің жүрімі кішкентай $R_t \ll r_0$ ($J_R^* < 35\%$ үшін) болса, онда түзілу жылдамдығы

на келтірілген, тебілген тритий атомдарының ағыны

$$J_R^* = \frac{3}{4} \frac{R_t}{r_0} \quad (10)$$

тән. Туындау жылдамдығына келтірілген тритийдің сферадан диффузиялық ағыны:

$$J_D^* = \frac{3}{\tilde{y}}. \quad (11)$$

Үлкен түйіршіктер үшін беттік қабаттың тебілу эфекті өсерінен тритиймен кедейлену ескерілген тритийдің сферадан келтірілген толық ағынының былайша жазуға болады:

$$J^* = J_R^* + J_D^* = \frac{3\tilde{x}}{4} + \frac{3}{\tilde{y}}. \quad (12)$$

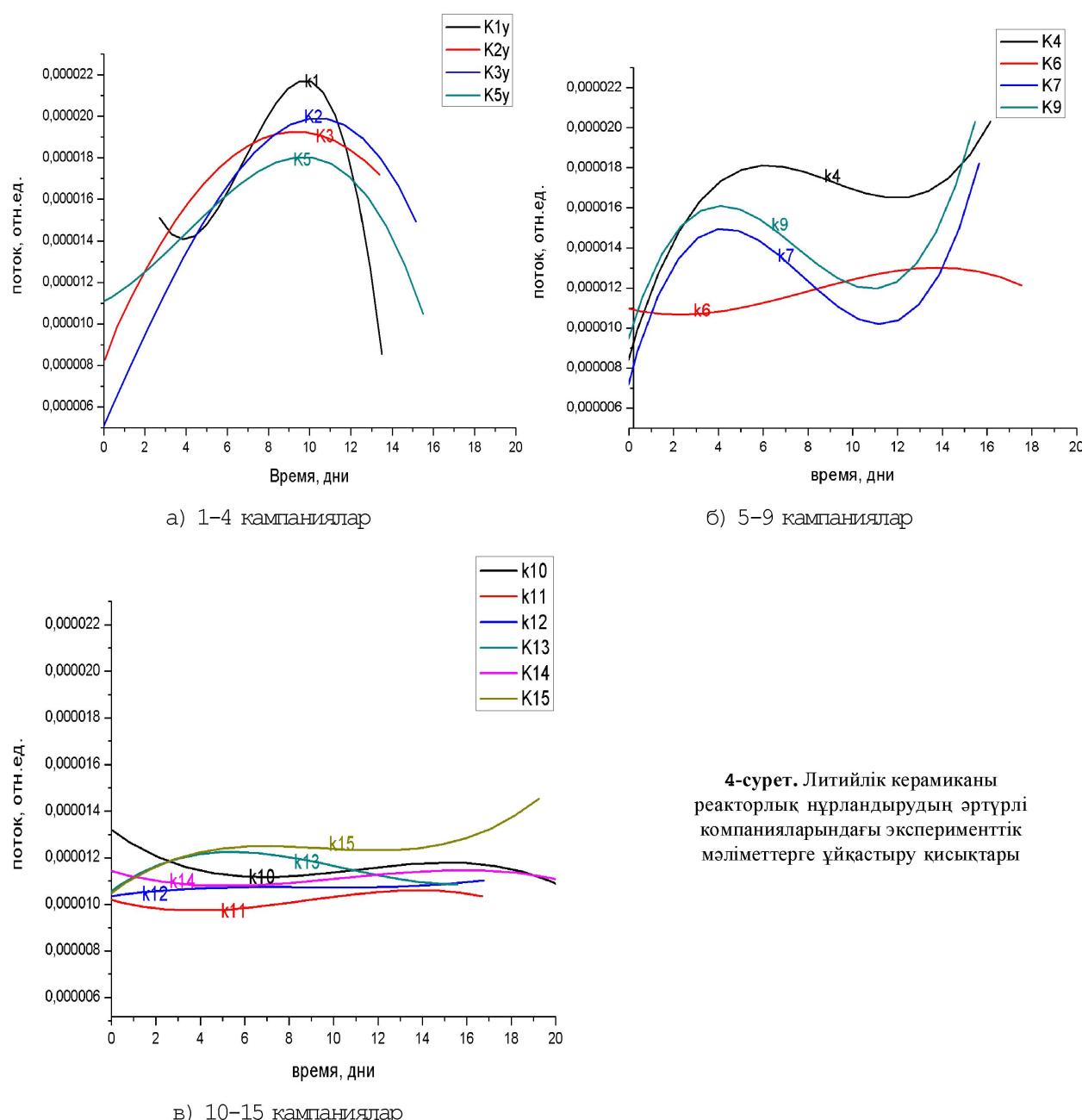
Мұнда J^* – үлкен түйіршіктер үшін беттік қабаттың тебілу өсерінің есебінен тритиймен кедейлену ескерілген сферадан келтірілген толық ағыны, $J^* R_t$ – түзілу жылдамдығына келтірілген тебілген тритий атомдарының ағыны, $J^* D$ – туындау жылдамдығына келтірілген тритийдің сферадан диффузиялық ағыны, $\tilde{x} = \frac{R_t}{r_0}$; $\tilde{y} \rightarrow \infty$; R_t – тритий тебілуінің

зерттелетін материалдағы жүрімі [см], r_0 – сферадан түйіршік радиусы [см].

Тритийдің литий титанатынан бөліну механизмдері

Реакторлық нұрландау жағдайында литийлік керамикадан тритийдің туындау және шығарылу процестерін математикалық модельдеу мынаны көрсетті: Тұракты температурада, нейтрондармен нұрландаудың басында тритийдің концентрациясы сызықтық өседі (нейтрондардың флюэнсі мен литий – 6 изотопының концентрациясына пропорционал), одан кейін өсу қарқыны төмендейді, ал, акырында, үлгідегі тритийдің концентрациясы тұрақтанады – тритийдің туындау жылдамдығы оның радиактивтілік ыдырау жылдамдығымен (тым мardымсыз) және үлгіден шығарылу жылдамдығымен теңгеріледі.

Литий титанатынан тритий ағынының нұрландау уақытына тәуелділігінің $J(t)$ қисықтарын сипатына байланысты (біркелкілік дәрежесіне) екінші немесе төртінші дәрежелі полиномдармен жүргізілді. Қындастыру қисықтарының жынтығы 4 а, б, в суреттерінде келтірілген.



4-сурет. Литийлік керамиканы
реакторлық нүрландырудың әртүрлі
компанияларындағы эксперименттік
мәліметтерге үйқастыру қисықтары

Алғашқы кампаниялар үшін барлық $J(t)$ тәуелділіктер максимум арқылы өтеді, а және б мәндері әртүрлі кампаниялар үшін азғана өзгереді және оларды орташауға болады. Литийдің жануы (оның тебілү әсерінен алғашқы орнын тастап кететін тритий мен гелийге түрленуі) барысында кристалдық тордың маңызды компоненті жайылады. Пайдаланған ақаулар тұзак сияқты әсер өтеді.

Аралық кампаниялар процестің өте тұрақсыздығымен сипатталады және кампания кезінде тритий шығарылуының бірнеше толқуын береді. Екі бәсекелес процесс байкалады: бірінші диффузиялық жол

(ашиқ тесікшелер) сияқты әсер етіп, диффузияны жеңілдетеді, екіншісі – тұзактар сияқты.

Ақырында кампаниялар тритий ағынының біркелкі және азғана өсуімен сипатталады және $J(t)$ тәуелділігі тұзусызыққа жақын. Реакторлық экспериментте литий титанатынан тритийдің боліну дәрежесі литий-6 бойынша 22% жанып кетуге дейін бридер материалындағы литийдің мөлшері кемігендеге аздал қана өседі.

Литийдің айтартылған жануына, яғни, литий титанатындағы маңызды құрылымдық өзгерістерге карамастан, тритий ағыны жуық тұрақты болып қала

береді. Сірә, бұл, тритий көзінің шығынының нүрлан-дырылатын материал шығаратын тритийдің үлесін көбейтетін, женілдетілген диффузиялық жолдардың пайда болуына байланысты шығар.

Қорытынды

Тритийдің Li_2TiO_3 литийлік керамикадан туындауы және шығарылуы эксперименталдық зерттелді.

Реакторлық эксперимент нәтижелерінің математикалық өндөрілгөнде. Тритийдің литий керамикасы материалында тасымалдану процесін бар-бар сипаттайтын математикалық модель ұсынылды. Тритийдің туындауы мен шығарылуын шектейтін механизмдер анықталған.

Li_2TiO_3 литий мегатитанатының салыстырмалы тәмен (200 ден 400 °C дейін) температураларда тритий босатылуының көп үміт күтерлік жылдамдығына дейін тұрақтылығы көрсетілген.

Алынған мәліметтер термоядролық реакторлардың литий негізіндегі бридерлік материалдарын жа-сауда қолданылуы мүмкін.

ӨДЕБІЕТТЕР

1. Miller J.M., Hamilton H.B., Sullivan J.D. // Testing of lithium titanate as an alternate blanket material. // *J. Nucl. Mater.* 1994. V. 212-215. P. 877-880.
2. Zeschky J., Goetz-Neunhoeffer F., Neubauer J., Jason Lo S.H., Kummer B., Scheffler M., Greil P. // Preceramic polymerderived cellular ceramics // *Composites Science and Technology*. 2003. V. 63. P. 2361.
3. Nishikawa M., Baba A., Kawamura Y. // Tritium inventory in LiAlO_2 blanket. // *J. Nucl. Mater.* 1997. V. 246. P. 1-8.
4. Nishikawa M., Baba A. // Tritium inventory in Li_2ZrO_3 blanket // *J. Nucl. Mater.* 1998. V. 257. P. 162-171.
5. Kudo H., Okuno K. // Tritium behavior in blanket system // *J. Nucl. Mater.* 1988. V. 155-157. P. 524.
6. Hashimoto K., Nishikawa M., Nakashima N., Beloglazov S., Enoeda M. // *Fusion Eng. and Des.* 2002. V. 61-62. P. 375-381.
7. Verrall R.A., Jones J.K. AECL-11768 (CFFTP G-9637), (1997).
8. Van der Laan J.R., Conrad R., Bakker K., Roux N. M.P. // Stijkel, Proc. 20th Symp. On Fusion Technology. France, 1998. P. 1239-1242.
9. Tsuchiya K., Nacamichi N., Nagao Y., Enoeda M., Osaki T., Tanak S., Kawamura H. In Situ Tritium Recovery Experiments of Blanket In-pile Mockup with Li_2TiO_3 Pebble Bed in Japan // *Journal of Nuclear Science and Technology*. V. 38, N 11. P. 996-1003 (November 2001).

10. Van der Laan J.G., Boccaccini L.V., Conrad R., Fokkens J.H., Jong M., Magielsen A.J., Pijlgroms B.J., Reimann J., Stijkel M.P., Malang S. Test-element assembly and loading parameters for the in-pile test of HCPB ceramic pebble beds // *Fusion engineering and design* 61-62 (2002) 383-390.

11. Тажибаева И.Л., Кенжин Е.А., Чакров П.В., Аринкин Ф.М., Гизатуллин Ш.Х., Бекмухамбетов Е.С., Шестаков В.П., Чихрай Е.В., Кульсартов Т.В., Куйкабаева А., Kawamura H., Tsuchiya K. // Использование реактора ВВР-К для длительных радиационных испытаний литиево-вой керамики Li_2TiO_3 для бланкета ТЯР. ВАНТ. Вып. 2. 2007. С. 3-10.

12. Shestakov V., Tazhibayeva I., Kawamura H., Kenzhin Y., Kulsartov T., Chikhray Y., Kolbaenkov A., Arinkin F., Giza-tulin Sh., Chakrov P. // In-pile assemblies for investigation of tritium release from Li_2TiO_3 lithium ceramic. *Fusion Science and Technology*. V. 47. May 2005. P. 1084-1088.

Резюме

В статье описывается методика и техника эксперимента, объекты исследования, приводятся результаты реакторных испытаний на реакторе ВВР-К, обработка результатов экспериментов по выделению трития из титаната лития Li_2TiO_3 . Предложены механизмы миграции трития при облучении титаната лития Li_2TiO_3 , и определено влияние длительного реакторного облучения на генерацию трития из литиевой керамики Li_2TiO_3 . Выбрана математический модель, описывающая процесс переноса трития в материале литиевой керамики и найдены основные параметры массо-переноса трития.

Summary

The paper describes technique of experiment, materials under study, as well as shows results of reactor tests at the WWR-K reactor and analysis of experimental results for tritium release from lithium titanate Li_2TiO_3 . There were considered mechanisms of tritium migration under irradiation of lithium titanate Li_2TiO_3 and defined impacts of long-term reactor irradiation on production and tritium release from lithium ceramic Li_2TiO_3 . The mathematical model was selected for describing the tritium transfer in lithium ceramic material and main parameters of tritium mass-transfer were defined.

Казахский национальный университет

им. аль-Фараби, г. Алматы

Поступила 24.09.07г.