

УДК 621.039.621.03

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ПАРАМЕТРОВ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА С ЖИДКИМ ЛИТИЕМ И ЛИТИЕВОЙ КАПИЛЛЯРНО-ПОРИСТОЙ СИСТЕМОЙ В УСЛОВИЯХ РЕАКТОРНОГО ОБЛУЧЕНИЯ

*И.Л. Тажибаяева¹, Т.В. Кульсартов¹, Ю.Н. Гордиенко¹, Ж.А. Заурбекова¹, Ю.В. Понкратов¹,
Н.И. Барсуков¹, Е.Ю. Тулубаев¹, В.В. Бакланов¹, В.С. Гныря¹, Е.А. Кенжин²*

¹*Институт атомной энергии Национального ядерного центра РК, Курчатов, Казахстан*

²*Семипалатинский государственный университет имени Шакарима, Семей, Казахстан*

В работе рассмотрено влияние реакторного облучения на процессы взаимодействия водорода с жидким литием и литиевой капиллярно-пористой системой (КПС). Эксперименты проводились методом газовой абсорбции с использованием специально сконструированного ампульного устройства. Приводятся результаты исследования взаимодействия водорода с жидким литием и литиевой КПС в условиях реакторного облучения, а именно температурные зависимости константы скорости взаимодействия водорода с жидким литием при различных мощностях реактора, энергии активации процессов и предэкспоненты в аррениусовской зависимости. Зафиксирован эффект увеличения поглощения водорода исследуемыми образцами под действием реакторного облучения. Эффект может быть объяснён увеличением подвижности водорода в жидком литии за счёт локальных перегревов по объёму лития, а также взаимодействием ионов гелия и трития (образующихся в результате ядерной реакции ${}^6\text{Li}$ с нейтроном) с поверхностной гидридной плёнкой.

Ключевые слова: термоядерный синтез, литий, литиевая КПС, абсорбционный метод, константа скорости растворения.

THE INVESTIGATION OF HYDROGEN ISOTOPES INTERACTION PARAMETERS WITH LIQUID LITHIUM AND LITHIUM CAPILLARY-POROUS SYSTEM UNDER REACTOR IRRADIATION

*I.L. Tazhibayeva¹, T.V. Kulsartov¹, Yu.N. Gordienko¹, Zh.A. Zaurbekova¹, Yu.V. Ponkratov¹, N.I. Barsukov¹,
Ye.Yu. Tulubayev¹, V.V. Baklanov¹, V.S. Gnyrya¹, Ye.A. Kenzhin²*

¹*Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan*

²*Shakarim Semipalatinsk State University, Semey, Kazakhstan*

In this paper, the influence of reactor irradiation on the processes of hydrogen interaction with liquid lithium and lithium capillary-porous system (CPS) is considered. The experiments were carried out by gas absorption method using a specially designed ampoule device. The results of studies of the hydrogen interaction with liquid lithium and lithium CPS under reactor irradiation conditions is described, namely: the temperature dependence of the hydrogen interaction rate constant with liquid lithium at different reactor power, the activation energy and pre-exponential factor in Arrhenius dependence. The effect of increasing of hydrogen absorption by the specimens under the influence of reactor irradiation is fixed. The effect can be explained by the acceleration of hydrogen diffusion in liquid lithium by the hot spots in the lithium volume, and the interaction between the ions of helium and tritium (produced in the nuclear reaction of ${}^6\text{Li}$ with neutron) with a surface hydride film.

Key words: nuclear fusion, lithium, lithium CPS, absorption method, dissolution rate constant.

ВВЕДЕНИЕ

При создании установок управляемого термоядерного синтеза (УТС) проблема подбора конструкционных и функциональных материалов является определяющей. Одним из напряжённых узлов в термоядерных реакторах является дивертор, без которого пока не просматривается конструкция ни реактора следующего поколения ДЕМО, ни будущих промышленных реакторов. Энергетические нагрузки на пластины дивертора на порядок и более (в случае срывов плазменного шнура) могут превышать нагрузки на первую стенку разрядной камеры [1].

Проблемы деградации обращённых к плазме материалов и разрушения изделий на их основе, накопление трития и загрязнение плазмы могут быть преодолены путём использования жидких металлов с низким зарядовым числом. Наилучшим кандидатом в качестве контактирующего с плазмой материала приёмных пластин дивертора и других внутрикамерных устройств является литий.

Преимущество использования жидкого лития в качестве материала, обращённого к плазме, было подтверждено большим количеством проведённых экспериментов с литиевыми устройствами в моделирующих условиях на плазменных ускорителях КСПУ, МК-200UG, установке «Плазменный фокус» и в условиях действующих токамаков (NSTX, FTU, T11-M) [2—5]. В настоящее время выполняется проект

по созданию и испытанию макета литиевого дивертора (МЛД) на установке Казахстанский материало-ведческий токамак (КТМ) [6—8].

Кроме того, ещё до завершения работ над Техническим проектом ИТЭР в России была предложена идея сложного материала на основе капиллярной пористой структуры из различных металлов и сплавов, заполненной жидким литием с саморегуляцией его расхода. Идея использования литиевой КПС нашла подтверждение своих возможностей во многих экспериментах, в результате которых была получена следующая информация:

- пластины с литиевыми КПС выдерживают тепловые нагрузки до 50 МВт/м² и в непрерывном режиме не разрушаются при потоке энергии 10 МВт/м²;
- небольшая скорость течения лития в КПС и самовосстанавливающиеся диэлектрические покрытия стенок в системе подачи лития снимают проблему МГД-сопротивления;
- прокачка лития в диверторе позволяет выводить одновременно тритий и другие газы из зоны разрядной камеры и выделять их вне экспериментального зала с реактором;
- при поступлении лития в разрядную камеру значение $Z_{эф}$ снижается до величины 1—1,1.

Одной из проблем, связанных с применением подобных жидколитиевых систем в реакторах синтеза, является определение параметров взаимодействия обращенной к плазме поверхности с рабочими газами в условиях, моделирующих реальную работу установок, т.е. в условиях нейтронного и гамма-излучения. Поэтому настоящая работа посвящена исследованиям влияния нейтронного облучения на сорбционные характеристики лития и литиевой КПС.

ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Изготовление и предварительная подготовка исследуемых образцов. *Предварительная подготовка образцов металлического лития* (исходный химический состав приведен в табл. 1) включала в себя следующее: литий массой около 50 г закладывался в специальную капсулу из нержавеющей стали, после чего следовал его отжиг в течение 2 ч при непрерывной безмасляной вакуумной откачке (давление в камере составляло около 10⁻⁴ Па) и температуре лития около 973 К. В нержавеющей капсуле была установлена специальная крышка, предотвращающая испарение лития. Далее от отожженного образца отрезался кусок лития, который закладывался в экспериментальную ампулу (масса исследуемого образца лития составила около 0,85 г), после чего ампула откачивалась до вакуума не хуже 10⁻⁴ Па.

Т а б л и ц а 1. Химический состав лития

Химический элемент	Содержание, %
Li	98
Na	1
Ca	0,15
N	0,1
Cl	0,02
Si	0,005
Fe	0,005

Предварительная подготовка образцов литиевой КПС включала в себя несколько этапов. Вначале следовало изготовление самой КПС. Для её изготовления была использована сетка из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т толщиной 0,1 мм и размером ячейки около 100 мкм (рис. 1, а). Из этой сетки были

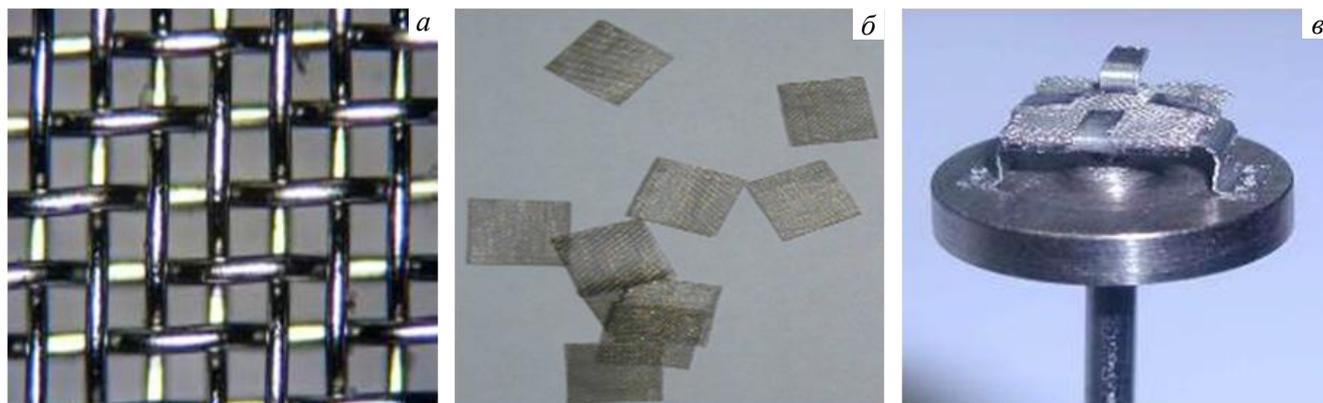


Рис. 1. Исследуемый образец литиевой КПС: а — сетка из стали 12Х18Н10Т; б — заготовки для матрицы КПС; в — КПС, подготовленная к заливке литием

вырезаны восемь одинаковых квадратов размером 10×10 мм (рис. 1, б). После этого квадраты из сетки были уложены на подложку и закреплены зажимами, в результате чего получился пористый мат с пористостью 30—40%. Затем изготовленная матрица КПС с помощью предусмотренных конструкцией креплений была установлена и закреплена на заранее изготовленном доньшке экспериментального устройства (рис. 1, в). Для контроля температуры образца КПС на подложке было предусмотрено место для крепления термопары ВР.

Затем проводили высокотемпературную дегазацию устройства с КПС (рис. 2) в течение 10 ч в условиях непрерывной откачки. После проведения отжига экспериментального устройства остаточное давление в камере с образцом КПС и в устройстве для заливки литием составило не более 10^{-5} Па.

Далее в отожжённое экспериментальное устройство был загружен металлический литий. В соответствии с разработанной ранее технологией образец КПС и устройство для заливки литием с загруженным в него литием с помощью установленных омических нагревателей были отожжены в течение 2 часов при температуре 973 К в условиях безмасляной откачки. При проведении отжига литий не подавался в тракт заливки образца. После завершения подготовительных работ была проведена процедура вакуумной заливки литием образца КПС. За процессом заливки велось визуальное наблюдение (через смотровое окно, расположенное в верхней части камеры экспериментального устройства), в результате которого было зафиксировано полное заполнение жидким литием всего объёма основы КПС.

После заливки КПС литием образец был установлен в реакторное ампульное устройство и откачен до давления не хуже 10^{-4} Па.

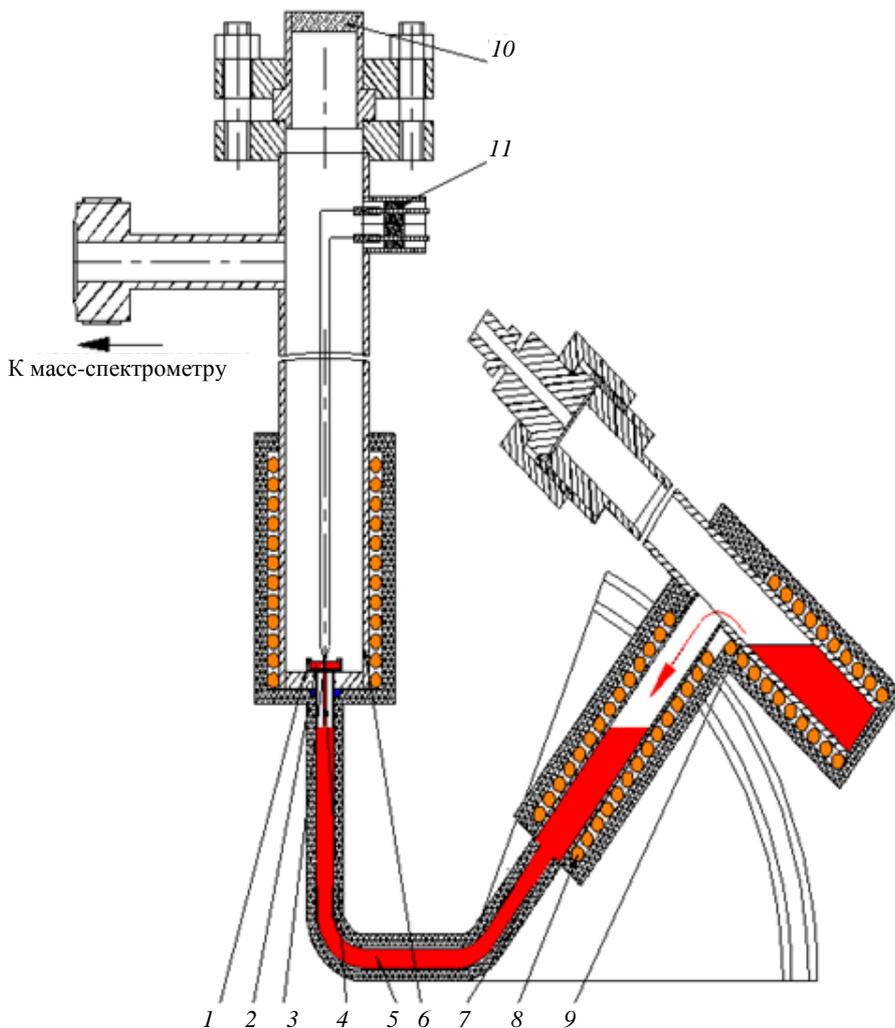


Рис. 2. Устройство для изготовления образцов литевых КПС: 1 — крепления; 2 — КПС; 3 — термопары; 4 — фитиль; 5 — жидкий литий; 6 — корпус камеры; 7 — теплоизоляция; 8 — нагреватели; 9 — ёмкость с литием; 10 — смотровое окно; 11 — гермоввод для термопары

АМПУЛЬНЫЕ УСТРОЙСТВА ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ РЕАКТОРНЫХ СОРБЦИОННЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

С целью проведения исследований с жидким литием и литиевой КПС в условиях реакторного облучения были разработаны и созданы два реакторных ампульных устройства.

Схемы реакторных ампул показаны на рис. 3 и 4. Каждая ампула включает в себя:

- активную ячейку с термопарами, нагревателем и исследуемыми образцами (для одной из ампул это был литий природного изотопного состава, для другой — литиевая КПС);
- систему охлаждения азотом.

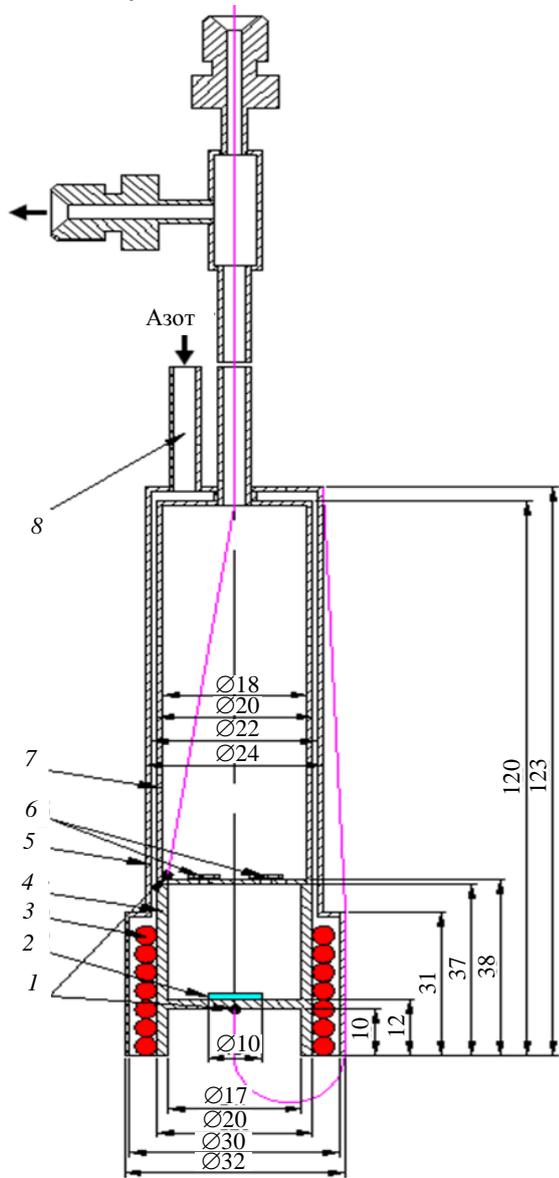


Рис. 3. Схема ампульного устройства с образцом литиевой КПС: 1 — термопары; 2 — образец литиевой КПС (масса 0,04 г); 3 — нагреватель (в оболочке 12X18Н10Т Ø 4 мм); 4 — корпус ампулы (медь); 5 — кожух охлаждения (12X18Н10Т); 6 — отражательные экраны; 7 — корпус ампулы (12X18Н10Т); 8 — труба подачи азота

Нижняя часть капсул состоит из медного стакана, на дне которого расположен исследуемый образец, и приваренного к нему опорного кольца из стали 12X18Н10Т. Верхняя часть капсул также изготовлена из стали 12X18Н10Т и приварена к верхней части медного стаканчика. Внутри каждой капсулы расположена крышка из нержавеющей стали с отверстиями, закрывающая медный стакан и предотвращающая распыление лития по всей внутренней поверхности капсулы во время проведения экспериментов. Капсулы были приварены к трубкам из нержавеющей стали, которые предназначены для откачки ампул и подачи изотопов водорода.

Ампульные устройства снабжены омическими нагревателями, предназначенными для нагрева исследуемого образца и обеспечения поддержания выбранных температурных режимов в проводимых экспериментах. Для контроля температуры установлены две хромель-алюмелевые термопары: одна — на дне, вторая — на крышке, расположенной внутри капсул. Также для проведения реакторных экспериментов на каждом ампульном устройстве смонтирована система охлаждения в виде одетого на капсулу чехла. Охлаждение предусматривает продувку газообразного азота через чехол.



Рис. 4. Вид ампульного устройства: а — с литиевой КПС; б — с жидким литием

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Исследования проводились на экспериментальном стенде ЛИАНА, расположенном в реакторе ИВГ-1.М (Курчатов, Казахстан). Экспериментальный стенд ЛИАНА предназначен для проведения исследований взаимодействия изотопов водорода с различными материалами ТЯР, в том числе при воздействии реакторного излучения. Значение потока нейтронов на мощности реактора ИВГ-1М, равной 6 МВт, приведено в табл. 2. Экспериментальный стенд ЛИАНА состоит из трёх основных систем: вакуумной, напуска газа и измерительной.

Т а б л и ц а 2. Поток нейтронов в центре активной зоны реактора ИВГ-1.М на мощности 6 МВт

Энергетическая группа	До 0,67 эВ	От 0,67 эВ до 0,1 МэВ	От 0,1 до 10 МэВ	Интегральный поток
Нейтронный поток, $1/(\text{см}^2 \cdot \text{с})$	$(0,87 \pm 0,06)10^{14}$	$(0,42 \pm 0,03)10^{14}$	$(0,22 \pm 0,01)10^{14}$	$(1,50 \pm 0,10)10^{14}$

Схема подключения ампулы представлена на рис. 5 и выделена красной линией. Фотографии ампулы перед установкой и после установки в канал реактора представлены на рис. 6 и 7.

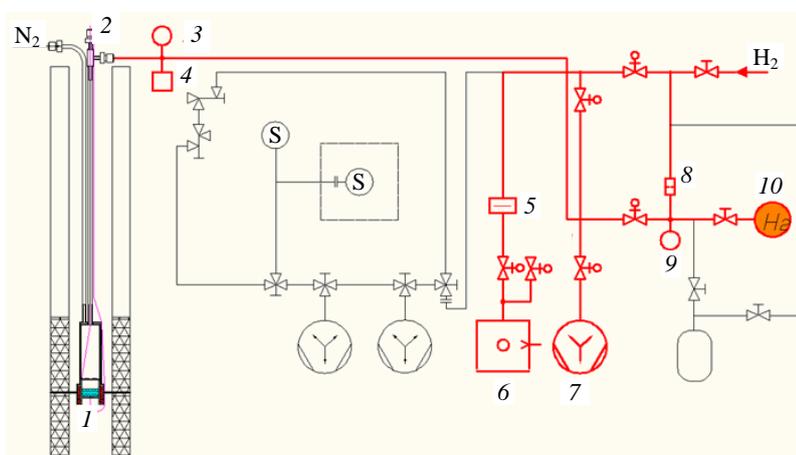


Рис. 5. Схема экспериментальной установки ЛИАНА: 1 — центр активной зоны; 2 — ампула с образцом; 3 — датчик давления ConvectOrg; 4 — датчик давления ИКДа; 5 — азотная ловушка; 6 — механический насос; 7 — магниторазрядный насос; 8 — палладий-серебряный фильтр; 9 — датчик давления ПМДГ; 10 — ресивер спектрально-чистого водорода



Рис. 6. Активная ячейка с исследуемым образцом



Рис. 7. Ампула загруженная в канал реактора ИВГ-1.М и подключенная к стенду ЛИАНА

МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

Для проведения исследований был выбран метод газовой абсорбции. Суть метода заключалась в следующем: после того, как в ампуле с образцом будут достигнуты все необходимые (заданные программой проведения эксперимента) условия, устанавливается стационарная температура образца. Далее в камеру напускается известное количество газа, после чего следует насыщение образца из газовой фазы при выбранной температуре. На всём протяжении эксперимента ведётся непрерывная регистрация изменения давления газа в ампуле.

Из полученных зависимостей давления водорода от температуры над литиевой КПС предварительно рассчитывались константы скорости взаимодействия

$$K = - \frac{dP(t)/dt}{P(t)} \frac{V}{RTS}, \quad (1)$$

где V — объём экспериментального устройства с исследуемым образцом; R — универсальная газовая постоянная; T — температура газа; P — давление газа в экспериментальном устройстве; $dP(t)/dt$ — скорость изменения давления газа в экспериментальном устройстве; S — площадь поверхности исследуемого образца.

В некоторых экспериментах в объёме ампулы с образцом изменялось давление водорода. Это было выполнено для определения зависимости скорости абсорбции водорода от его давления. В ампулу либо подавался водород под дополнительным давлением, либо из её объёма быстро скачивалось

некоторое количество водорода, после чего проводились измерения зависимостей изменения давления водорода в ампуле с образцом при другом уровне давления водорода.

Необходимо отметить, что в эксперименте не достигались равновесные состояния системы водород—литий, поэтому невозможно было определить равновесные константы (такие, например, как константа растворимости). В то же время по полученным зависимостям изменения давления можно оценить кинетические параметры процессов сорбции и растворения.

Исследования для каждого из образцов (литий и литиевая КПС) выполнялись в таком порядке: после установки ампулы в канал проводились дореакторные эксперименты по абсорбции водорода исследуемым образцом. Далее реактор выводился на мощность (промежуток между дореакторными и реакторными экспериментами составлял примерно 1 ч) и проводились реакторные эксперименты по абсорбции водорода исследуемым образцом. В процессе реакторных исследований по завершении серии экспериментов для выбранных исследуемых температур изменялась мощность реактора, далее серия экспериментов повторялась. По завершении реакторного пуска сразу проводилась серия послереакторных экспериментов. Условия проведения экспериментов представлены в табл. 3.

Т а б л и ц а 3. Условия проведения исследований

Параметр	Образец лития	Образец литиевой КПС
Исследуемый температурный интервал	473—623 К	473—623 К
Входное давление водорода	80—400 Па	80—400 Па
Мощность реактора	1, 3 и 6 МВт	0,5, 1 и 2 МВт

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

На рис. 8 представлена полная диаграмма серии экспериментов по исследованию газовой абсорбции водорода образцом лития. На данном рисунке представлены графики изменения мощности реактора, температуры образца, давления водорода в ампуле за всё время экспериментов (а именно дореакторный, реакторный и послереакторный цикл измерений). Для большей наглядности на рис. 9 показан в увеличенном и более удобном для восприятия виде один из этапов эксперимента — участок А, выделенный прямоугольником на рис. 8. На рис. 9, в частности, видно, что угол наклона линеаризованных участков падения давления в ампуле зависит от температуры образца, причём с увеличением температуры лития скорость абсорбции водорода растёт, а при фиксированной температуре и различном давлении (на графике это температура 623 К) скорость абсорбции пропорционально зависит от давления водорода в ампуле. Здесь стоит отметить, что за время эксперимента давление на одной температуре падает на величину около $5 \pm 2\%$ от начального, соответственно наклон графика (который определяет скорость изменения давления) тоже изменяется на $5 \pm 2\%$ (от начального падения), однако в силу незначительного изменения давления это визуально зафиксировать на графике сложно.

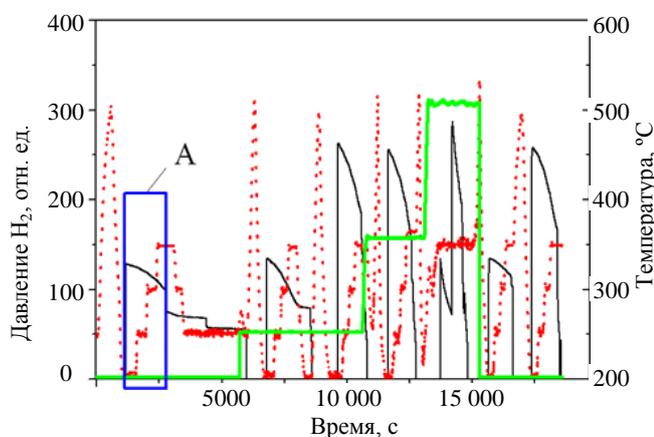


Рис. 8. Диаграмма эксперимента по исследованию абсорбции водорода литием: $\cdot \cdot \cdot$ — температура образца; — — — давление водорода; — — — мощность реактора 1, 3, 6 МВт

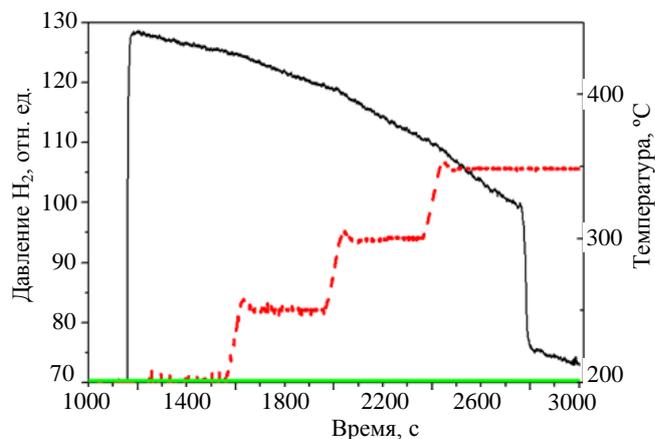


Рис. 9. График изменения температуры образца лития и давления водорода в ампуле на этапе А серии экспериментов (увеличенный участок А обозначен прямоугольником на рис. 8): $\cdot \cdot \cdot$ — температура образца; — — — давление водорода

В результате проведённых экспериментов была получена зависимость изменения давления водорода над жидким литием при температуре от 473 до 623 К. При данных температурах был обнаружен эффект влияния реакторного облучения на скорость взаимодействия водорода с жидким литием. Данный эффект заключался в увеличении скорости взаимодействия в условиях реакторного облучения (рис. 10—12). На графиках рис. 10—12 приведены нормированные на начальную величину давления, линеаризованные начальные участки зависимости давления от времени для различных температур.

Результаты экспериментов показали, что увеличение скорости взаимодействия водорода с жидким литием пропорционально мощности излучения.

В результате проведённых экспериментов также были получены зависимости изменения давления водорода над литиевой КПС в условиях реакторного облучения и без него. Из полученных зависимостей давления водорода от температуры над литиевой КПС по формуле (1) предварительно были рассчитаны константы взаимодействия. На рис. 13 представлены температурные зависимости константы взаимодействия водорода с жидким литием и литиевой КПС в условиях реакторного облучения и без облучения.

В экспериментах с литиевой КПС был также зафиксирован эффект ускорения взаимодействия водорода с литиевой КПС в условиях реакторного облучения, однако он был существенно менее замет-

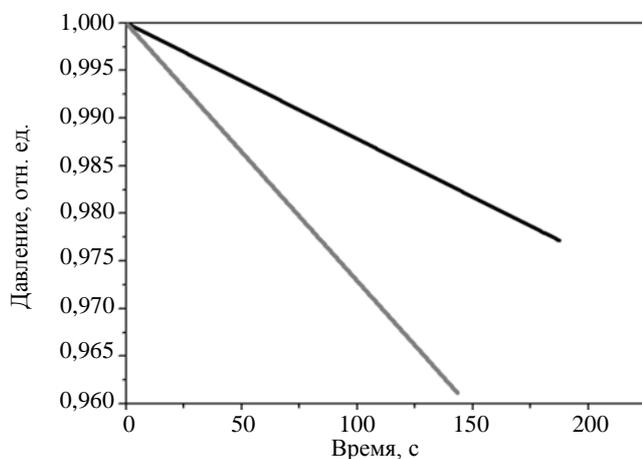


Рис. 10. Нормированный график изменения давления водорода в экспериментальном устройстве при температуре образца 523 К и уровне давления 120 Па: — — в условиях облучения на мощности 1 МВт; — — без облучения

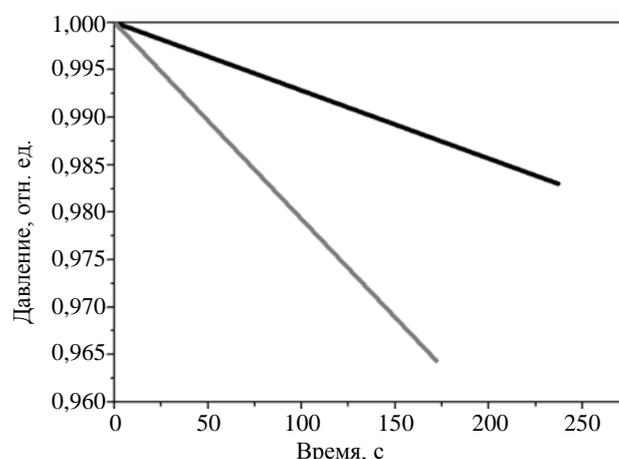


Рис. 11. Нормированный график изменения давления водорода в экспериментальном устройстве при температуре образца 473 К и уровне давления 130 Па: — — в условиях облучения на мощности 3 МВт; — — без облучения

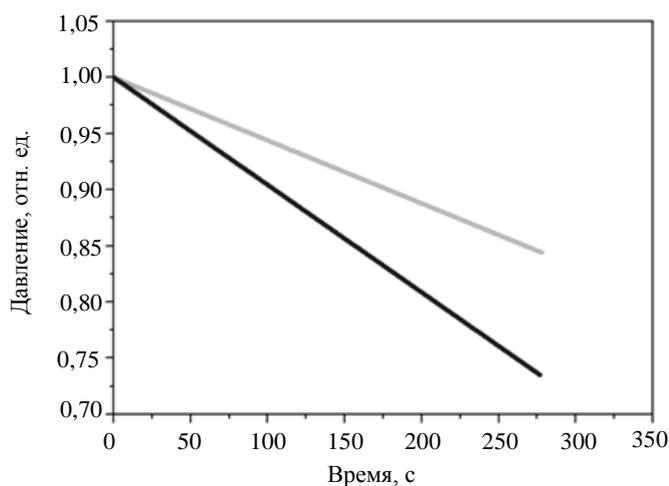


Рис. 12. Нормированный график изменения давления водорода в экспериментальном устройстве при температуре образца 350 °С в условиях реакторного облучения и уровне давления 90 Па: — — в условиях облучения на мощности 1 МВт; — — в условиях облучения на мощности 6 МВт

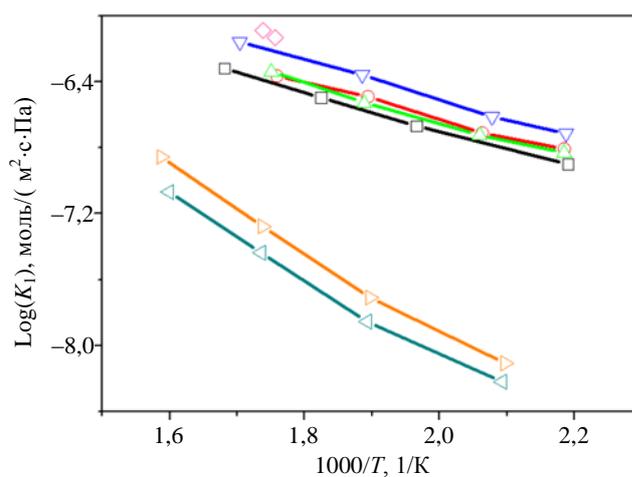


Рис. 13. Константа скорости взаимодействия водорода с жидким литием и литиевой КПС в условиях реакторного излучения и без: жидкий литий: □ — без облучения; ○ — реакторные эксперименты, 1 МВт; △ — реакторные эксперименты, 1 МВт; ▽ — реакторные эксперименты, 3 МВт; ◇ — реакторные эксперименты, 6 МВт; КПС: ◁ — без облучения; ▷ — реакторные эксперименты, 2 МВт

ным, чем в случае с литием: разница в рассчитанных параметрах аррениусовской зависимости для реакторных и вне реакторных экспериментов была выше оцененной ошибки примерно в 2 раза. Кроме этого, данное различие удалось зафиксировать только для мощности реактора 2 МВт. На мощности 1 МВт различие в параметрах аррениусовской зависимости константы скорости взаимодействия для реакторных и вне реакторных экспериментов было в пределах ошибки измерения. В табл. 4 представлены параметры аррениусовской зависимости константы скорости взаимодействия водорода с литием и литиевой КПС. Физический смысл константы скорости взаимодействия водорода с литием определяет количество атомов газа, провзаимодействовавших с веществом (в данном случае можно считать взаимодействием сорбцию молекул водорода поверхностью лития и образование гидридов лития молекулами водорода на поверхности лития) за единицу времени, отнесённое к давлению газа и площади образца [9, 10].

Таблица 4. Значения энергии активации процесса поглощения водорода и предэкспоненты в аррениусовской зависимости константы скорости взаимодействия водорода на разных этапах эксперимента

Стадия эксперимента	K_0 , моль/(м ² ·с·Па)	E , кДж/моль	Примечание
Литий			
1	$(5,0 \pm 0,2)10^{-5}$	$22,8 \pm 0,4$	Без облучения
2	$(4,0 \pm 0,7)10^{-5}$	$21,6 \pm 0,7$	Реакторные эксперименты (1 МВт)
3	$(3,5 \pm 1,0)10^{-5}$	$21,7 \pm 0,5$	Реакторные эксперименты (1 МВт)
4	$(4,5 \pm 1,5)10^{-5}$	$20,6 \pm 0,7$	Реакторные эксперименты (3 МВт)
Литиевая КПС			
1	$(1,3 \pm 0,7)10^{-3}$	47 ± 3	Без облучения
2	$(5,4 \pm 3)10^{-5}$	44 ± 3	Реакторные эксперименты (2 МВт)

Из представленных на рис. 13 результатов можно сделать следующие выводы:

— значение константы скорости взаимодействия водорода с литиевой КПС меньше, чем с жидким литием. Это связано с тем, что скорость растворения водорода зависит от параметров его переноса в литии, которые определяются тепловой диффузией и конвективными потоками. Качественно понятно, что в случае с литиевой КПС жидкий литий стабилизируется металлической матрицей и менее подвижен, так как перенос в литиевой КПС по сравнению с жидким литием отчасти блокируется силами поверхностного натяжения, возникающего в сетчатой капиллярной структуре образца;

— константа скорости взаимодействия водорода как для литиевой КПС, так и для жидкого лития увеличивается в условиях нейтронного облучения.

Качественно наблюдаемый эффект увеличения константы скорости взаимодействия водорода с жидким литием при реакторном облучении можно объяснить следующим образом: при взаимодействии водорода с поверхностью лития наступает баланс между количеством водорода, поступающего на поверхность и растворяющегося в объём лития. Концентрация водорода на поверхности (фактически концентрация гидрида лития на поверхности) снижает площадь взаимодействия водорода из газовой фазы с литием. Во время реакторных экспериментов с литием за счёт ускорения диффузии увеличивается сток гидрида лития в объём образца, увеличивается эффективная поверхность взаимодействия водорода с литием.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИССЛЕДОВАНИЯ

Для объяснения полученного эффекта рассмотрим более подробно процессы, происходящие на поверхности жидкого лития при насыщении его из газовой фазы водородом (рис. 14).

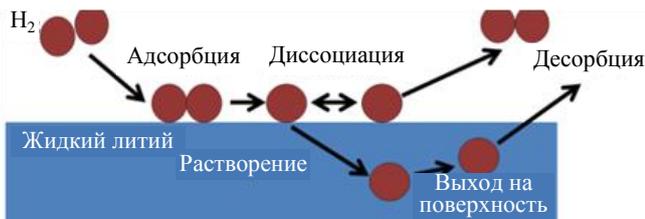


Рис. 14. Процессы, протекающие при взаимодействии водорода с жидким литием

Адсорбция. Прежде всего поверхность жидкого лития адсорбирует определённое количество молекул водорода. Адсорбированные поверхностью жидкого лития молекулы диссоциируют на атомы. Количество адсорбированных атомов на поверхности за единицу времени можно записать следующим образом: $k_{\text{прил}}\mu r S_{\text{эф}}$ моль/с, где

$k_{\text{прил}}$ — коэффициент прилипания водорода, равный отношению числа адсорбированных частиц к общему числу падающих частиц на поверхность из газовой фазы; μ — газокинетический коэффициент, рав-

ный числу молекул, падающих на единицу поверхности в единицу времени при единичном давлении водорода, моль/(м²·с·Па); p — давление газа, Па; $S_{эф}$ — эффективная площадь взаимодействия, м².

Десорбция. Атом водорода на поверхности может покинуть поверхность жидкого лития вследствие процесса десорбции (при ассоциации с таким же диссоциированным атомом). Количество десорбированных атомов за единицу времени определяется отношением bN_0^2 , моль/с, где b — константа скорости десорбции м⁴/(моль·с); N_0 — концентрации адсорбированных атомов на входной поверхности жидкого лития за единицу времени, моль/м².

Растворение. Определённое количество атомов, находящихся на поверхности, растворяется в объёме жидкого лития. Количество атомов, растворённых в объёме жидкого лития за единицу времени, равно χN_0 , где χ — константа скорости растворения, м³/с.

Выход атомов из объёма жидкого лития на поверхность. Возможен обратный процесс выхода атомов на поверхность из объёма жидкого лития. Количество вышедших на поверхность атомов за единицу времени будет определяться произведением ηC_0 , моль/с, где η — константа скорости выхода атомов водорода из объёма на поверхность, м³/с; C_0 — количество растворённых атомов в объёме жидкого лития, моль/м³. Тогда изменение количества атомов на поверхности (общий баланс) можем записать следующим образом:

$$\frac{\Delta N}{\Delta t} = k_{прил} \mu p S_{эф} - b N_0^2 - \chi N_0 + \eta C_0. \quad (2)$$

Теперь проанализируем процессы более подробно и применительно к нашим условиям. Для оценки скорости процесса десорбции атомов водорода в рамках настоящей работы был проведён следующий эксперимент: после насыщения исследуемого образца жидкого лития водородом подача газа прекращалась, и весь оставшийся водород откачивался из экспериментальной ампулы. После этого с помощью масс-спектрометра были сняты спектры водорода при различных температурах эксперимента (от 473 до 673 К) для определения количества десорбированного водорода. Показано, что содержание водорода не превышало его фонового значения. Отсюда мы можем сделать вывод, что количество десорбированных молекул незначительно, и мы можем записать $bN_0 \rightarrow 0$.

Далее проанализируем процесс выхода атомов водорода из объёма на поверхность. Прежде всего заметим, что общее отношение поглощённого водорода к литию составило около $7 \cdot 10^{-4}$ за все время экспериментов. Согласно фазовым диаграммам (рис. 15 и 16) можно сделать заключение о том, что в наших экспериментах при равномерном растворении водорода в литии мы имеем фазу (3), соответствующую обычному раствору водорода в литии (точка А на графике рис. 15). Общее количество поглощённых атомов оценивалось из экспериментальных зависимостей поглощения водорода, и общее количество атомов поглощённого водорода за все время эксперимента делилось на величину количества атомов исследованного лития.

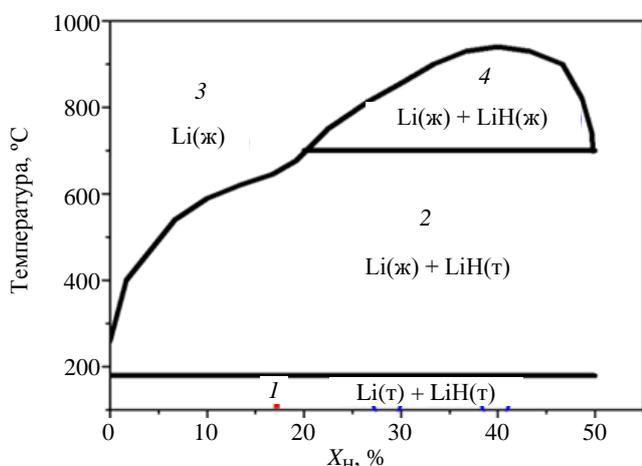


Рис. 15. Фазовая диаграмма состояния системы литий—гидрид лития

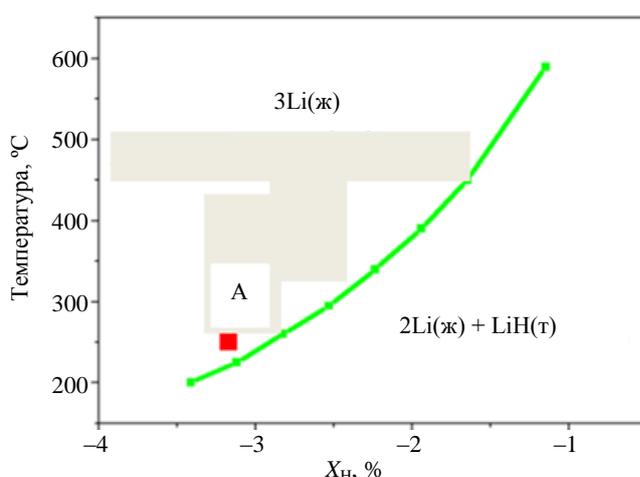


Рис. 16. Фазовая диаграмма состояния системы литий—гидрид лития при низкой концентрации водорода

Согласно же экспериментальным оценкам, полученным из экспериментальной зависимости поглощения водорода для случая с максимальной константой скорости взаимодействия и последующе-

го моделирования, отношение концентрации адсорбированного водорода к литию на поверхности во время эксперимента по насыщению составило $5 \cdot 10^{-2}$. Данное значение является нижней оценкой отношения количества занятых адсорбционных центров водорода к количеству атомов на поверхности лития, в пределе максимальное значение соответствует гидриду лития и равно 1. Следовательно, при таком соотношении количество вышедших на поверхность атомов не окажет значимого влияния на общий баланс, а значит $\chi N_0 \gg \eta C_0 \rightarrow 0$.

С учётом сделанных упрощений уравнение (1) принимает вид

$$\frac{\Delta N}{\Delta t} = k_{\text{прил}} \mu p S_{\text{эф}} - \chi N_0. \quad (3)$$

Из уравнения (3) следует, что количество атомов на поверхности зависит от эффективной площади поверхности, скорости растворения атомов в объёме и качества поверхности, которое характеризуется коэффициентом прилипания. В нашем случае коэффициент прилипания практически не меняется, следовательно, количество атомов на поверхности зависит только от скорости растворения и эффективной площади поверхности. На основании уравнения (3) было проведено моделирование сорбции водорода жидким литием во вне реакторном эксперименте и в условиях реакторного облучения. Для проведения моделирования рассмотрено, как рекуррентно с течением времени происходит изменение количества атомов водорода на поверхности литиевой КПС.

В начальный момент времени $t = 0$ количество атомов на поверхности образца будет равно нулю $N_{\text{H}} = 0$. Эффективная площадь взаимодействия водорода с образцом равна площади лития $S_{\text{эф}} = S_0$. Через определённый промежуток времени Δt представим его как $t_1 = \Delta t + 0$, выражение (3) примет вид

$$\frac{N_{\text{H}}^1 - N_{\text{H}}^0}{\Delta t} = p_0 \Psi k_{\text{прил}} S_{\text{эф}}^0. \quad (4)$$

Эффективная площадь взаимодействия вычислялась по формуле

$$S_{\text{эф}}^i = S_0 \left(1 - \frac{N_{\text{H}}^i}{N_{\text{Li}}^0} \right). \quad (5)$$

Давление водорода в камере через i -й промежуток времени составит

$$p_i = p_0 \prod_{k=1}^{i-1} \left[1 - \frac{N_{\text{Li}}^0 - N_{\text{H}}^k}{N_{\text{Li}}^0} k_{\text{прил}} \Psi \frac{RT \Delta t}{V_{\text{кам}}} \right], \quad (6)$$

где $V_{\text{кам}}$ — объём камеры с водородом.

Рекуррентная формула для расчёта количества атомов водорода на поверхности с жидким литием после всех преобразований примет вид

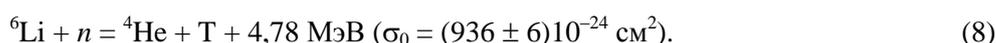
$$N_{\text{H}}^{i+1} = N_{\text{H}}^1 + \frac{p_0 \prod_{k=1}^{i-1} \left[1 - \frac{N_{\text{Li}}^0 - N_{\text{H}}^k}{N_{\text{Li}}^0} k_{\text{прил}} \Psi \frac{RT \Delta t}{V_{\text{кам}}} \right]}{N_{\text{Li}}^0} \Delta t S_0 \Psi k_{\text{прил}} (N_{\text{Li}}^0 - N_{\text{H}}^i) - \Delta t \chi N_{\text{H}}^i. \quad (7)$$

Таким образом было проведено моделирование процесса сорбции водорода литиевой поверхностью.

Результаты моделирования показали, что водород заполняет всю поверхность до максимальной концентрации за предельно короткое время — менее чем за 10^{-3} с. Эффективная площадь взаимодействия водорода с литием и литиевой КПС для настоящих экспериментов составила около $5 \cdot 10^{-5}$ м².

Можно предположить, что эффект влияния реакторного излучения прежде всего связан с увеличением константы скорости растворения за счёт увеличения подвижности водорода в литии. Это предположение основано на следующем.

При облучении в литии интенсивно протекают реакции поглощения нейтрона ${}^6\text{Li}$. Данная реакция имеет высокое сечение, и в результате выделяется много энергии (образующиеся продукты реакции — ионы гелия и трития с энергией 2—3 МэВ каждый):



При их термализации по всему объёму жидкого лития возникают многочисленные области локальных перегревов, что способствует конвективным перемешиваниям и, в конечном счёте, влияет на параметры переноса в литии.

Однако наблюдаемый эффект может быть связан с взаимодействием гидрида лития на поверхности с ионами гелия и трития, образующимися в результате ядерной реакции ${}^6\text{Li}$ с нейтроном в приповерхностном слое образца. Далее представлены оценки данного предположения для возможного вклада в увеличение скорости поглощения водорода.

Оценка изменения количества атомов водорода на поверхности литиевой КПС с учётом предположений об образовании гидрида лития на поверхности и его взаимодействия с ионами гелия и трития. Рассматриваемый процесс можно назвать растворением, обусловленным взаимодействием ионов гелия и трития с гидридом лития на поверхности, в результате которого образованные ионы гелия и трития, проходя через поверхность, разрушают гидрид лития и приводят к растворению водорода в объём лития.

Другими словами:

— во время проведения эксперимента по сорбции литиевой КПС на поверхности лития образуются устойчивые соединения гидрида лития LiH , который покрывает практически всю поверхность лития, оставляя свободной только поверхность ($S_{\text{эф}}$);

— образование гидрида идёт во всём диапазоне температур плавления лития, причём при температурах 773—973 К идёт самое эффективное образование гидрида [9, 11];

— ионы, образованные в результате реакций под действием нейтронов, при выходе с поверхности литиевой КПС способны разрушать соединения LiH , увеличивая при этом эффективную площадь взаимодействия.

Рождённые в реакции ионы гелия и трития должны пересечь поверхность S_0 и термализоваться на глубине, равной средней длине пробега данного атома в жидком литии. Таким образом, всё взаимодействие происходит в слое жидкого лития, объём которого равен $S_0\lambda$ (рис. 17).

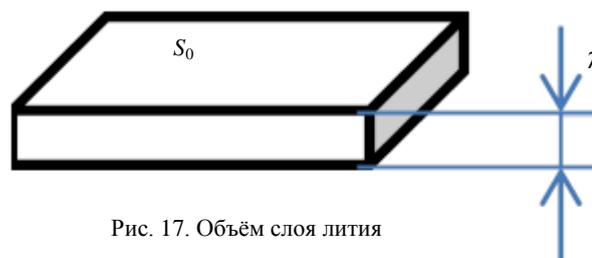


Рис. 17. Объём слоя лития

Значения средней длины пробега были оценены с использованием формулы для определения удельной ионизационной потери энергии при прохождении заряженных частиц через вещество (формулы Бете—Блоха [12]) по программе LISE++ (рис. 18 и 19).

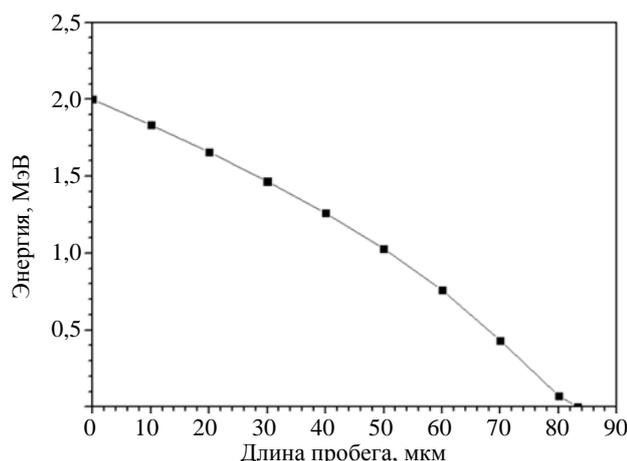


Рис. 18. Зависимость энергии атомов трития от их длины пробега в жидком литии (энергия атомов трития 2 МэВ)

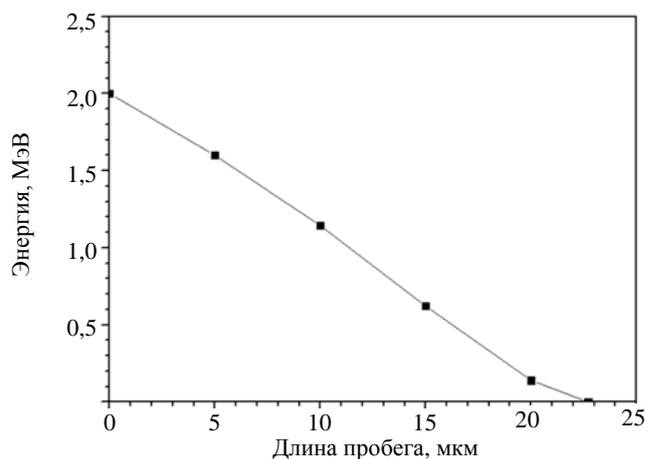


Рис. 19. Зависимость энергии атомов гелия от их длины пробега в жидком литии (энергия атомов гелия 2 МэВ)

Тогда уравнение баланса на поверхности, применённое в рекуррентном расчёте, с учётом предположений об образовании гидрида лития на поверхности и его взаимодействия с ионами гелия и трития примет вид

$$N_{\text{H}}^{i+1} = N_{\text{H}}^1 + \frac{p_0 \prod_{k=1}^{i-1} \left[1 - \frac{N_{\text{Li}}^0 - N_{\text{H}}^k}{N_{\text{Li}}^0} k_{\text{прил}} \Psi \frac{RT\Delta t}{V_{\text{кам}}} \right]}{N_{\text{Li}}^0} \Delta t S_0 \Psi k_{\text{прил}} (N_{\text{Li}}^0 - N_{\text{H}}^i) - \Delta t \chi N_{\text{H}}^i - N_{\text{He}} \Delta t - N_{\text{T}} \Delta t, \quad (9)$$

где последние члены учитывают изменение концентрации атомов водорода на поверхности литиевой КПС, вызванное взаимодействием гидрида лития с ионами трития и гелия.

На основе данной формулы были определены константы скорости растворения водорода, рассчитанные с учётом взаимодействия гидрида лития с ионами трития и гелия (рис. 20).

Если говорить о процессе растворимости водорода в условиях реакторного излучения с учётом распада гидрида на поверхности, то в данном случае константа скорости растворимости $\chi_{рм}$ складывается из константы скорости растворимости при взаимодействии лития с атомом водорода на поверхности χ_0 и константы скорости растворения при выделении водорода из гидрида лития под воздействием образовавшихся ионов гелия и трития χ_{LiH} :

$$\chi_{рм} = \chi_0 + \chi_{LiH}. \quad (10)$$

При сравнении константы скорости растворения в условиях реакторного излучения с учётом распада гидрида $\chi_{рм}$ и константы скорости растворения в условиях реакторного излучения $\chi_{рз}$, полученной из экспериментальных данных, видно, что значение растворимости $\chi_{рз}$, полученной из экспериментальных данных, больше на 30%.

Данное расхождение можно объяснить тем, что на самом деле при взаимодействии водорода с литиевой КПС в условиях реакторного излучения происходит много сложных процессов, влияющих на константу растворения, о которых говорилось ранее.

Из полученных температурных зависимостей были определены основные параметры взаимодействия (табл. 5), такие, как энергия активации процессов и предэкспоненты в аррениусовской зависимости

$$\chi = \chi_0 = \exp(-E_d/RT). \quad (11)$$

Т а б л и ц а 5. Значение энергии активации и предэкспоненты в аррениусовской зависимости константы скорости растворения водорода литиевой КПС

Стадия эксперимента	$\chi_0, \text{ м}^2/\text{с}$	$E, \text{ кДж/моль}$	Примечание
1	$(0,59 \pm 0,1)10^{-3}$	48 ± 3	Без облучения
2	$(0,61 \pm 0,1)10^{-5}$	45 ± 3	Реакторные эксперименты (2 МВт)

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате выполненных работ впервые были получены температурные зависимости константы скорости взаимодействия изотопов водорода с литием и литиевой КПС при различном уровне мощности реактора — от 1 до 6 МВт. По полученным зависимостям были определены основные параметры взаимодействия, такие, как энергия активации процессов и предэкспоненты в аррениусовской зависимости, константы скорости взаимодействия изотопов водорода с жидким литием (литиевой КПС).

В результате проведённых экспериментов был обнаружен эффект увеличения константы скорости взаимодействия водорода с литием (литиевой КПС) в условиях реакторного излучения. Были рассчитаны константы скорости взаимодействия водорода с литием и литиевой КПС, причём значение константы скорости взаимодействия для литиевой КПС оказалось меньше константы скорости взаимодействия для жидкого лития. Это может быть связано с тем, что в КПС литий помещён в матрицу, которая ограничивает его перемешивание.

Была предложена качественная модель, описывающая взаимодействие водорода с поверхностью лития, которая позволила рассчитать константу скорости растворения водорода в литиевой КПС.

Был сделан вывод, что наблюдаемый эффект влияния реакторного излучения на увеличение скорости взаимодействия водорода с исследуемыми образцами связан с увеличением константы

скорости растворения водорода в жидком литии, в результате чего увеличивается эффективная площадь взаимодействия. В свою очередь, увеличение константы скорости растворения вызвано увеличением подвижности, которое может быть объяснено результатом реакции нейтрона с ${}^6\text{Li}$, в ходе которой выделяется значительное количество энергии, что приводит к локальным перегревам по объёму жидкого лития и способствует его конвективному перемешиванию.

Кроме этого, было показано, что для температуры около 523—573 К эффективная площадь взаимодействия водорода с поверхностью может определяться процессами взаимодействия ионов гелия и трития (образующихся в результате ядерной реакции нейтрона с ${}^6\text{Li}$) с гидридом лития на поверхности.

REFERENCES

1. **Golubchikov L.G.** Structural material tasks of ITER. — VANT. Ser. Termoyadernyi sintez (Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Thermonuclear Fusion), 2004, issue 2, pp. 80—94 (in Russian).
2. **Lyublinskiy I.E., Evtikhin V.A., Vertkov A.V.** The use of liquid lithium in the systems of power thermonuclear reactor. — Perspektivnye materialy (Perspective materials), 2005, № 6, pp. 5—17 (in Russian).
3. **Evtikhin V.A., Lyublinski I.E., Vertkov A.V., Belan V.G., Konkashbaev I.K., Nikandrov L.B.** Calculation and experimental investigation of fusion reactor divertor plate and first wall protection by capillary-pore systems with lithium. — J. Nucl. Mater., 1999, vol. 271—272, pp. 396—400.
4. **Evtikhin V.A., Lyublinski I.E., Vertkov A.V., Mirnov S.V., Sotnikov S.M., Prokhorov A.S., Azizov E.A., Lazarev V.B., Safronov V.M., Korzhavin V.M.** Main direction and recent test modeling results of lithium capillary-pore systems as plasma facing components. — Plasma Science and Technology, 2004, vol. 6, № 3, pp. 2291—2295.
5. **Apicella M.L., Mazzitelli G., Lazarev V.B., Azizov E.A., Mirnov S.V., Petrov V.G., Evtikhin V.A., Lyublinski I.E., Vertkov A.V. et al.** Preliminary analysis on a liquid lithium limiter in capillary porous system (CPS) configuration in view of a “litzation” experiment on FTU tokamak. — Fusion Eng. and Des., 2005, vol. 75—79, pp. 351—355.
6. **Tazhibayeva I., Lublinski I., Vertkov A., Lazarev V., Azizov A., Mazzitelli G., Agostini P.** Mock-up divertor of KTM tokamak on the base of lithium CPS. — Fusion Science and Technology an International Journal of the ANS, 2011, vol. 60, № 2, FUSTE8 (2), pp. 554—557.
7. **Lyublinski I., Vertkov A., Evtikhin V., Balakirev V., Ionov D., Zharkov M., Tazhibayeva I., Mirnov S., Khomiakov S., Mitin D., Mazzitelli G., Agostini P.** Module of lithium divertor for KTM tokamak. — Fusion Eng. and Des., 2012, vol. 87, № 10, pp. 1719—1723.
8. **Lyublinski I.E., Vertkov A.V., Zharkov M.Yu., Semenov V.V., Mirnov S.V., Lazarev V.B., Tazhibayeva I.L., Shapovalov G.V., Kulsartov T.V., D'yachenko A.V., Mazzitelli G., Agostini P.** Status of design and experimental activity on module of lithium divertor for KTM tokamak. — Fusion Eng. and Des., 2013; <http://dx.doi.org/10.1016/j.fusengdes.2013.05.103>.

AUTHORS

Tazhibayeva I.L. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; tazhibayeva@nnc.kz

Kulsartov T.V. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; kulsartov@nnc.kz

Gordienko Yu.N. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; gordienko@nnc.kz

Zaurbekova Zh.A. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; zaurbekova@nnc.kz

Ponkratov Yu.V. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; ponkratov@nnc.kz

Barsukov N.I. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; barsukov@nnc.kz

Tulubayev Ye.Yu. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; enya121185@mail.ru

Baklanov V.V. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; baklanov@nnc.kz

Gnyrya V.S. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; slava@nnc.kz

Kenzhin Ye.A. Institute of Atomic Energy NNC RK, str. Krasnoarmeiskaya, 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan; kea@nnc.kz

Received 29 July 2013
Problems of Atomic Science and Technology
Ser. Thermonuclear Fusion, 2013, vol. 36, issue 4, pp.25—38.