

УДК 539.1.07

ИЗМЕРЕНИЕ КОНЦЕНТРАЦИИ ТРИТИЯ В СТЕНКЕ КАМЕРЫ
ТЕРМОЯДЕРНОГО РЕАКТОРА В ПРОЦЕССАХ ЕЕ НАСЫЩЕНИЯ
И ДЕЗАКТИВАЦИИ© 2012 г. А. И. Маркин, Л. А. Ривкис*, Э. А. Азизов,
Н. И. Сыромятников, И. Г. Прыкина*, А. А. Семенов*ГНЦ РФ «Троицкий институт инновационных и термоядерных исследований»
Россия, 142190, Троицк Московской обл.*Высокотехнологический НИИ неорганических материалов им. академика А.А. Бочвара
Россия, 123060, Москва, ул. Рогова, 5а

E-mail: marmagmik@triniti.ru

Поступила в редакцию 05.09.2011 г.

Представлены результаты исследований диффузии изотопов водорода в металлах с поликристаллической структурой. Анализируются условия диффузии в нержавеющей стали применительно к условиям работы реактора ИТЭР. Рассмотрены технологические режимы с распространением трития через стенку вакуумной камеры. Установлено, что при предполагаемых циклах работы реактора тритий внедряется в слой, толщина которого много меньше толщины стенки камеры. Согласно экспериментальным результатам по термодезактивации образцов из нержавеющей стали (с насыщенным тонким слоем трития), имеет место двухфазный процесс уменьшения запаса трития в образце. Это позволяет контролировать (по непрерывному измерению концентрации трития в камере реактора) процесс дезактивации камеры. При этом предполагается ограничение эффективной глубины проникновения трития в стенку камеры в рабочем цикле реактора. По времени возникновения фазы излома скорости потока выходящего трития предлагается диагностировать глубину диффузионной миграции трития, с тем чтобы своевременно заканчивать дезактивацию или включать дополнительные способы ограничения диффузии трития к внешней стенке во избежание его выхода в окружающую среду.

ВВЕДЕНИЕ

По результатам исследования методом магнитной микроскопии обнаружена достаточно сложная структура распределения водорода по глубине (z) в металлах. Считалось, что распределение концентрации n по глубине можно представить в виде экспоненты: $n \approx n_0 \exp(-z^2/4Dt)$, где D – коэффициент диффузии, а t – время насыщения. Однако полученные экспериментально детальные распределения трития по глубине металла при его насыщении имеют более сложную структуру (рис. 1, 2). На рис. 1 показано классическое распределение трития (кривая 1) при его насыщении при температуре 200°С с характерным спадом в соответствии с приведенной выше формулой, а на рис. 2 – полученное экспериментально распределение трития в образце меди более сложного вида, характерного для большинства других металлов с поликристаллической структурой (например, алюминия, бериллия).

Известные параметры диффузии являются неоднозначными (из литературных источников: коэффициент диффузии $D_0 = 6.6 \cdot 10^{-3}$ см²/с; энергия активации к диффузии $E_d = 0.38$ эВ; относи-

тельный коэффициент насыщаемости $K_{s0} = 3.7 \times 10^{-5}$ ат. фрак. (атомных фракций) · Па^{-1/2}; энергия активации к насыщению $E_s = 0.55$ эВ) и существенно отличаются, например, от характеристик диффузии в нержавеющей стали. Так, по уровню насыщения (200°С) они на несколько порядков меньше ($\sim 10^4$), а по коэффициенту диффузии (200°С) – на несколько порядков больше, чем в нержавеющей стали. Такое различие может быть вызвано либо возможным несоответствием параметров истинным значениям, либо неправильной их интерпретацией.

Измерения распределения трития в образцах меди с параметрами насыщения: $T = 900$ К, $P = 10^4$ Па, $t = 7$ ч – подтвердили отмеченный факт (см. рис. 2). Классический участок диффузии через зерна имеет размер $\Delta z \approx 0.4$ мм для $t = 8$ ч, что соответствует коэффициенту диффузии $D = \Delta z^2/4t \approx 10^{-8}$ см²/с и энергии активации $E_d = T \ln(D_0/D) \approx 1$ эВ (в предположении, что значение $D_0 = 6.6 \cdot 10^{-3}$ см²/с остается неизменным). Полученное новое значение энергии активации для диффузии существенно превышает известное из литературы ($E_d = 0.38$ эВ) и больше энергии активации трудно насыщаемо-

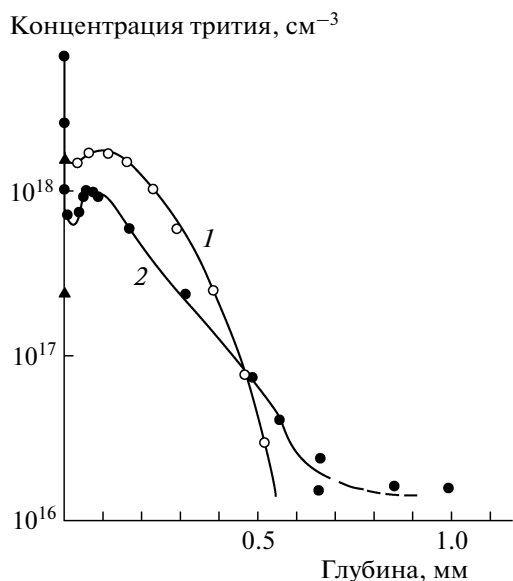


Рис. 1. Распределение концентрации трития по глубине образца из нержавеющей стали: 1 – без предварительного насыщения тритием, 2 – с предварительным насыщением тритием.

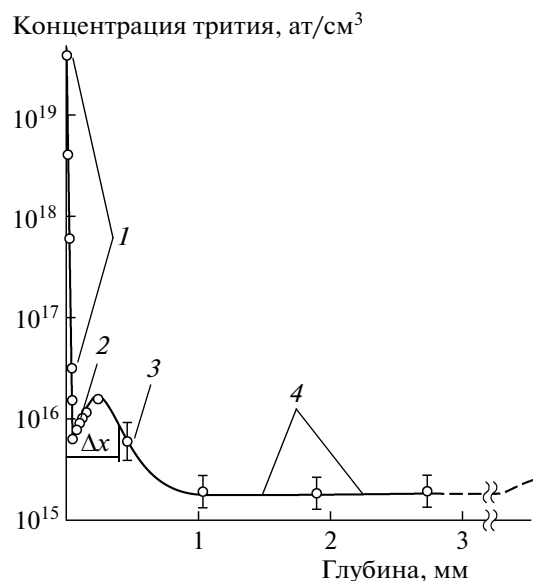


Рис. 2. Детальное распределение трития в меди: видны все зоны диффузионного процесса, а глубина пограничного слоя указывает на существование особой зоны, а также на чистоту эксперимента ($T = 900 \text{ K}$, $P = 10^4 \text{ Па}$, $t = 7 \text{ ч}$). 1 – область пограничного слоя, 2 – область провала, 3 – область классической диффузии, 4 – область межзеренной диффузии.

го водородом молибдена. Для измеренной концентрации $n_0 = 2 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ насыщение составляет $S = 7 \cdot 10^{-7} \text{ ат.Н/ат.Ме}$. При неизменном значении параметра $K_{s0} = 3.7 \cdot 10^{-5} \text{ ат. фрак} \cdot \text{Па}^{-1/2}$ энергия активации для насыщения составила $E_s \approx 0.7 \text{ эВ}$, что заметно превышает известное в литературе значение $E_s = 0.56 \text{ эВ}$. Для измеренной концентрации в области межзеренной диффузии $n_{\text{мз}} = (1.5-2) \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ получим $S = 5 \cdot 10^{-8} \text{ ат./ат.}$ и $E_s \approx 0.9 \text{ эВ}$, т.е. параметры межзеренной диффузии в меди оказались близки к литературным данным [1].

Данные, полученные для меди, позволяют сделать однозначный вывод о необходимости проведения измерений (методами магнитной микроскопии [2]) параметров насыщения и диффузии для других, используемых в термоядерных реакторах металлов: бериллия, лития, алюминия, молибдена, вольфрама, пыли металлов. Это позволит путем мониторинга определить реальную ситуацию с миграцией трития во внутренние металлические конструкции вакуумной камеры во время работы реактора и в процессе технологических процедур по удалению трития во избежание его выхода в окружающую среду. Одной из таких процедур является термическая дезактивация. Для контроля процессов диффузии трития в металлические конструкции камеры при дезактивации необходим мониторинг его выхода в камеру.

ДИФфуЗИЯ ТРИТИЯ В НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ

К настоящему времени для таких металлов, как нержавеющая сталь, инконель, медь и гидридные металлы, диффузионные явления достаточно хорошо изучены ($T > 473 \text{ K}$) с помощью магнитного микроскопа высокого разрешения и чувствительности. Распределение трития в стали 1X18Н10Т (см. рис. 1, кривая 1) получено при насыщении образцов размером $20 \times 30 \times 3 \text{ мм}$ в течение 5 ч при температуре 500 К и давлении газовой смеси изотопов Н + Т : Р = 0.25 + 0.25 атм [3]. Для насыщения использовались также образцы с предварительным насыщением тритием при $T = 500^\circ\text{C}$, $P = 0.5 \text{ атм}$ (рис. 1, кривая 2) [4, 5]. При этом характерная глубина диффузионного внедрения составила $x \sim 2 \sqrt{Dt} = 0.35 \text{ мм}$, что соответствует классическому диффузионному процессу.

Для исследования процессов насыщения в условиях, приближенных к условиям работы реактора ИТЭР, проводилось насыщение тритием образцов из нержавеющей стали (1X18Н10Т) размером $120 \times 120 \times 50 \text{ мм}$ при $T = 500 \text{ K}$, $P = 0.5 \text{ атм}$ в течение $t = 24 \text{ ч}$. Характерная глубина насыщенного слоя составила 0.7–0.8 мм, что соответствует процессу классической диффузии (рис. 3). Измерения проводились после насыщения тритием и после дезактивации образца методом радиолюминографии (Image plate). В обобщенном виде для времени работы реактора от 8 ч до 1 месяца

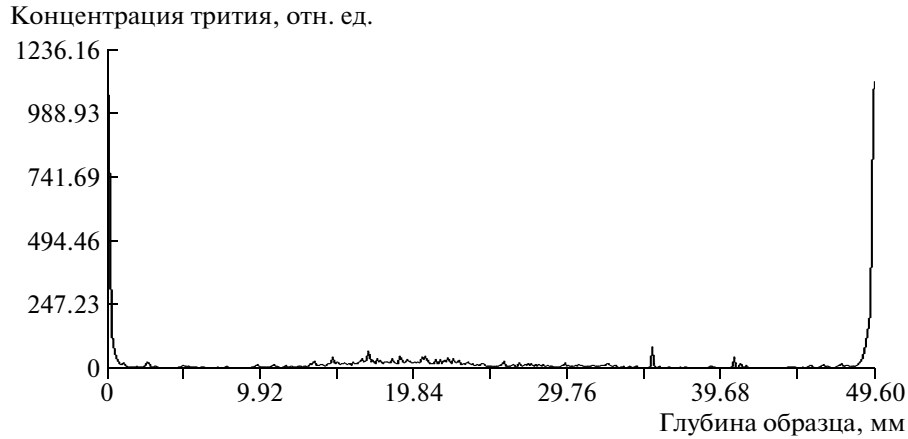


Рис. 3. Распределение концентрации трития после насыщения в образце из нержавеющей стали (1X18H10T) толщиной ~50 мм.

результаты насыщения тритием нержавеющей стали представлены на рис. 4. Приведенные на этом рисунке характерные распределения трития по глубине образца толщиной 50 мм для рабочей температуры 200°C и при различной продолжительности процесса насыщения показывают характерную глубину внедрения: спад в e раз — $z = 0.45$ мм, 0.8 мм и 4.4 мм; спад в 10 раз — $z = 0.68$ мм, 1.2 мм, 6.6 мм. Это свидетельствует о насыщении тритием тонкого (по сравнению с толщиной стенки) слоя внутренней поверхности камеры (даже в течение 1 месяца). Можно предположить, что образованная асимметрия распределения трития в стенке должна приводить к преимущественной термодезактивации во внутренний объем камеры, по крайней мере, до существенного диффузионного

перераспределения трития в сторону большей симметрии по толщине стенке камеры.

ПРОЦЕСС ТЕРМОДЕЗАКТИВАЦИИ КАМЕРЫ

Очевидно, что периодически вакуумная камера (при всех прочих методах ее защиты от внедрения и миграции трития) должна подвергаться термодезактивации при максимально допустимой температуре. Важным условием при этом является обеспечение выхода трития из стенки камеры только в ее внутреннюю область при непрерывной откачке системой вакуумных насосов (с транспортировкой в систему хранения, очистки, регенерации и подготовки). Данное условие накладывает ограничение на продолжительность работы реактора. Для рассматриваемой задачи основным ограничителем является характерная глубина внедрения трития, превышение которой приведет к уменьшению времени дезактивации (из-за уменьшения времени до выхода трития на внешнюю сторону стенки камеры), а значит, и к заметному снижению ее эффективности. О дополнительных методах удаления трития будет сказано ниже.

Примером термодезактивации является эксперимент, выполненный при изучении нового способа, ограничивающего внедрение трития. Часть образцов предварительно насыщались тритием при $T = 800$ К. Для этих образцов было отмечено существенное уменьшение концентрации трития и глубины его внедрения (см. рис. 1, кривая 2). Дезактивация образцов без предварительного насыщения тритием (рис. 5, кривая 2) и с предварительным насыщением тритием (рис. 5, кривые 3 (получены для одного и того же образца в одинаковых условиях)) проводилась при умеренной температуре 200°C в течение всего 5 ч. В процессе дезактивации в первых образцах концентра-

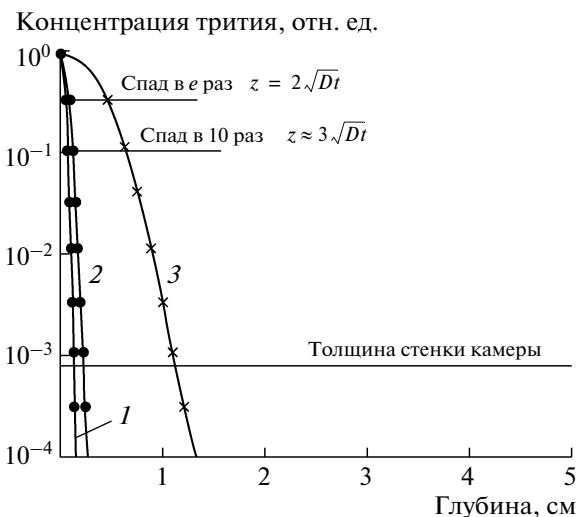


Рис. 4. Распределение концентрации трития по глубине стенки вакуумной камеры из нержавеющей стали для различного времени работы реактора: 1 — $t = 8$ ч ($\sim 3 \cdot 10^4$ с), 2 — 24 ч ($\sim 10^5$ с), 3 — 1 месяц ($3 \cdot 10^6$ с).

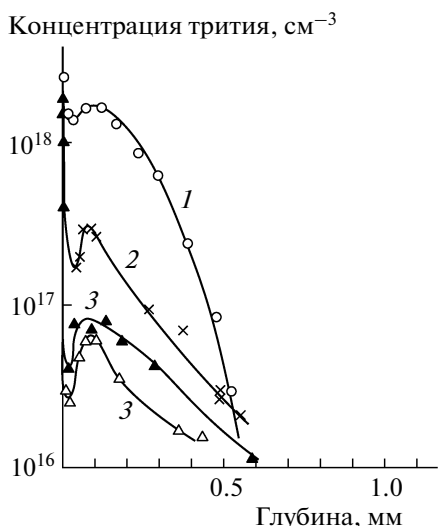


Рис. 5. Распределения концентрации трития по глубине образцов, полученные: 1 – после насыщения тритием без предварительного насыщения протием; 2 – после дезактивации образца без предварительного насыщения протием; 3 – после дезактивации образца с предварительным насыщением протием.

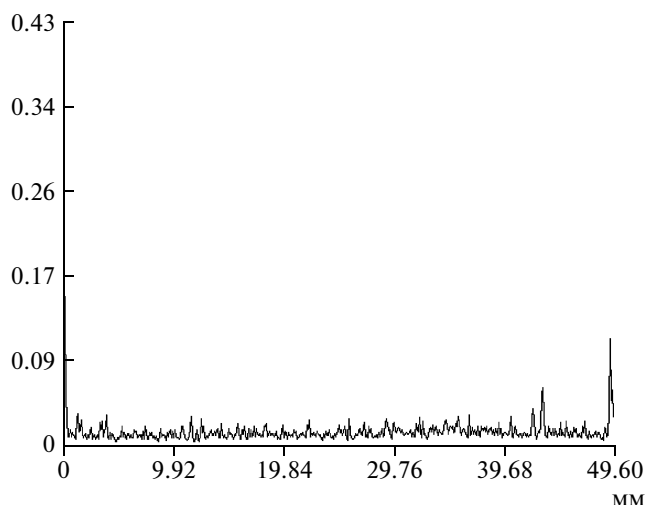


Рис. 6. Распределение трития в образце из нержавеющей стали толщиной 50 мм после его дезактивации в течение 24 ч при температуре 800°С.

ция трития по глубине уменьшилась в ~3 раза а во вторых образцах – в ~20 раз.

Также был выполнен эксперимент с насыщением и дезактивацией образца из нержавеющей стали, размер которого, 120 × 120 × 50 мм, сравним с толщиной стенки вакуумной камеры реактора. Насыщение проводилось при температуре $T = 200^{\circ}\text{C}$, давлении газа $P = 0.5$ атм в течение 24 ч. Результаты измерения методом радиolumинографии концентрации трития в образце после насыщения и после дезактивации при температуре 800°С в течение 24 ч представлены соответственно на рис. 3 и 6.

По результатам эксперимента проведен анализ процесса термодезактивации трития из приповерхностного слоя толщиной ~0.8 мм данного образца из нержавеющей стали толщиной ~50 мм

(т.е. много больше насыщенного слоя). Обнаружено, что процесс термодезактивации на первой стадии развивается в двух направлениях: выход из образца и диффузия в глубь образца. Запас (полное количество в образце) трития уменьшился на два порядка. Результаты предварительной оценки диффузионных процессов по известным параметрам [6] процесса дезактивации для средней температуры $\langle T \rangle$, К, на каждом условном этапе нагрева образца и ее стационарного состояния представлены в табл. 1.

При оценке приведенных в табл. 1 данных предполагалось, что половина потока идет внутрь образца, а другая половина – из образца. При этом масштаб диффузии трития (полное уширение) внутрь образца можно описать выражениями: $z_i \approx 2\sqrt{D_i t_i}$, $\Delta z_i = z_i - z_{i-1}$ – уширение основного слоя трития в глубь стенки только на i -м этапе времени нагрева. Уменьшение концентрации трития

Таблица 1. Параметры процесса дезактивации при температуре 800°С

Параметры	Этапы нагрева образца							
	1	2	3	4	5	6	7	8
$\langle T \rangle$, К	423	773	973	1043	1073	1073	1073	1073
Время дезактивации t_i , ч	0.25	0.5	1	1.25	7.25	13.25	19.25	25.25
Время этапа нагрева Δt_i , ч	0.25	0.25	0.5	0.25	6	6	6	6
Коэффициент диффузии D_i , см ² /с	$4 \cdot 10^{-9}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$1.2 \cdot 10^{-5}$	$2.3 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$
Уширение Δz_i , мм	0.038	1.3	3	3	8	6	4	4
Расширение слоя z_i	0.84	2.1	5	8	16	22	26	30
Выход трития, %	5	64	86	91	95.5	97	97.3	98

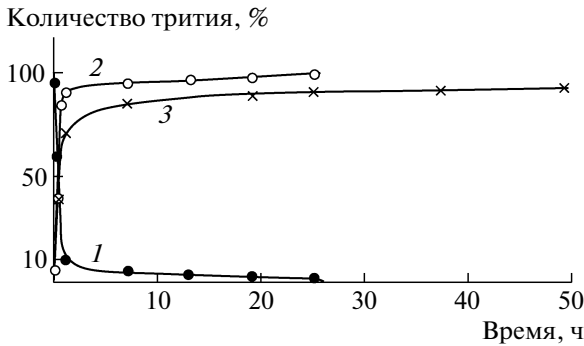


Рис. 7. Изменение концентрации трития в образце и его выхода из образца в процессе дезактивации: 1 – запас трития для $T=800^\circ\text{C}$, 2, 3 – выход трития из образца для $T=800^\circ\text{C}$ и 500°C соответственно.

поэтапно можно оценить как $Q_i \sim Q_{i-1}(1 - \Delta z_i/(z_0 + z_i))$, где $z_0 = 0.8$ мм – начальная толщина насыщенного слоя. Результаты, полученные для этапов нагрева образца № 6–№ 8, требуют дальнейшего уточнения, так как ширина слоя уже превышает толщину образца.

Из данных, приведенных в табл. 1, видно, что темп выхода трития из образца снижается со временем. Это связано с тем, что вначале выход трития из образца определяется только уровнем его концентрации с минимальным диффузионным масштабом ~ 1 мм, а после достижения диффузионным фронтом трития центральной части образца процесс диффузии становится общим для всей глубины распределения трития в образце. При этом существенно снижается уровень концентрации трития (из-за выхода наружу и распределения оставшейся доли по большей глубине) ($n \sim n_0(0.8/(2 \times 25)) \sim (1.6-3) \cdot 10^{-2}n_0$) и еще в большей степени уменьшается выходящий поток $J = SD\nabla n$ как из-за снижения концентрации, так и из-за увеличения диффузионного масштаба ($\nabla n = \Delta n/z$). Таким образом, на второй стадии, после установления равновесного диффузионного распределения трития по большей части толщины образца, происходит более медленное удаление трития из объема образца (рис. 7). В дальнейшем представляет интерес проведение эксперимента по дезактивации при $T=500^\circ\text{C}$.

Измерение концентрации трития на стадии транспортировки с отводом выходящего из образца трития в газовой фазе в смеси с аргоном в соответствии с параметрами эксперимента (время $t_i = 6$ ч, $T = 800^\circ\text{C}$, скорость потока смеси $v_n = 4.7$ см/с, $P_n = 1.2$ атм, смесь $\text{Ar} + \text{H}_2$, давление $P_{\text{H}} = 5 \cdot 10^3$ Па, концентрация водорода $n_{\text{H}} = 1.65 \cdot 10^{18}$ см $^{-3}$, коэффициент диффузии $D = 2.5 \cdot 10^{-5}$ см 2 /с) показало, что запас трития уменьшился в ~ 70 раз. Выполненные расчетные оценки выхода трития из образца в результате дезактивации показали умень-

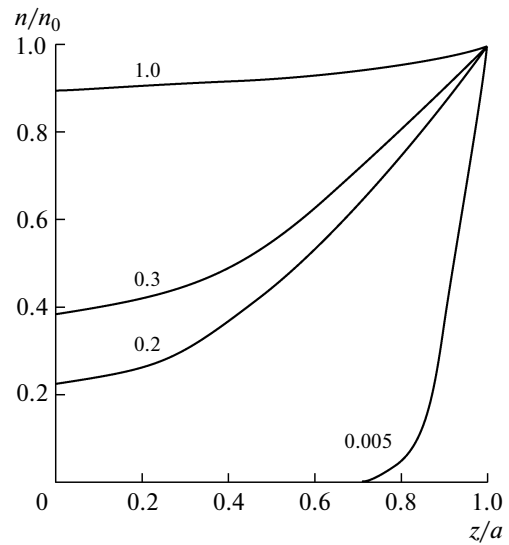


Рис. 8. Изменение концентрации трития в пластине толщиной $2a$ при нулевой начальной концентрации и постоянной концентрации на границе поверхностей для различных значений Dt/a^2 (цифры у кривых) [6].

шение запаса трития в образце на два порядка, что подтверждают полученные экспериментальные данные. Из расчетов следует, что основной выход трития происходит в первые 1–2 ч, включая процесс дезактивации, и на этапе нагрева образца от комнатной температуры до 800°C . Согласно табл. 1, этому временному интервалу соответствует диффузионное расширение тритиевого слоя (на уровне спада в e раз) до 8–10 мм от первоначальной ширины ~ 0.8 мм при максимально доступном уширении 25 мм. Считается и экспериментально подтверждается тот факт, что процесс диффузии при насыщении и термодезактивации происходит симметрично относительно центрального слоя образца на глубине 25 мм при его толщине 50 мм. Таким образом, уже при уширении тритиевого слоя на глубину 8–10 мм центральные слои образца начинают наполняться тритием суммарно с двух сторон [7]. В упрощенном виде при постоянной концентрации трития на границе распределение трития по толщине образца можно представить в виде:

$$n(z,t)/n_0 \approx 1 - (4/\pi) \exp(-\pi^2 Dt/a^2) \sin(\pi z/a),$$

где n_0 , n – концентрация трития соответственно на границе образца ($z = 0$) и на глубине z ; a – толщина образца.

На рис. 8 показано изменение концентрации трития для различных значений Dt/a^2 .

Проведенный анализ процесса дезактивации позволяет предположить, что наиболее эффективно и безопасно термодезактивацию трития необходимо проводить на ограниченном временном интервале (в зависимости от температуры),

Таблица 2. Параметры процесса дезактивации при температуре 500°C

Параметры	Этапы нагрева образца							
	1	2	3	4	5	6	7	8
$\langle T \rangle$, К	423	773	773	773	773	773	773	773
Время дезактивации t_i , ч	0.25	0.5	1.25	7.25	19.25	25.25	37.25	49.25
Коэффициент диффузии D_i , см ² /с	$4 \cdot 10^{-9}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$	$2.3 \cdot 10^{-6}$
Уширение Δz_i , мм	0.04	1.3	0.2	2.8	1.3	1.1	2	1.7
Расширение слоя z_i	0.84	2.1	2.8	5.6	8	9.1	11.1	12.8
Выход, %	5	64	73	86.5	91	92	93.5	94.4

до спада скорости выхода трития из стенки камеры во внутренний объем камеры реактора. Необходимо также провести оптимизацию температурных условий дезактивации, так как выполненный эксперимент показал, что при температуре 800°C основная дезактивация образца была выполнена на стадии его разогрева. Продолжение процесса дезактивации при дальнейшем остывании образца уже не будет соответствовать условиям развития процессов в камере реактора. При выполненной дезактивации разогрев образца до необходимой температуры происходит за 0.5 ч, после чего температура образца остается постоянной. Необходимо увеличить продолжительность процесса эффективной фазы дезактивации за счет уменьшения температуры процесса до 500°C.

Результаты расчета процесса дезактивации образца из нержавеющей стали при температуре 500°C представлены в табл. 2 и на рис. 7, кривая 3. Общий вид зависимости выхода трития из образца при этой температуре практически тот же, что и при 800°C, за исключением более позднего наступления момента излома, спустя 2–3 ч, и продолжительности дезактивации. При температуре 500°C процесс дезактивации можно завершать через ~20 ч.

Перспективным способом ограничения распространения трития к наружной поверхности камеры является организация отбора трития с помощью специально внедренного слоя металла с более высокой по сравнению с нержавеющей сталью SS316L диффузионной способностью и с использованием прокачки через отверстия, выполненные в этом слое, например, тяжелой воды (D₂O) или газовой смеси (0.95Ag + 0.05D₂) (рис. 9).

Для обеспечения термодезактивации необходимо слой 3 металла с высокой диффузионной способностью перенести ближе к внешней границе стенки камеры. В качестве слоя 3 можно использовать также вакуумный зазор, однако при этом возникают трудности по герметизации зазора.

Несомненно, получен важный результат – наличие излома на кривой выхода трития из образца. В связи с этим для диагностирования глубины диффузионной миграции трития, чтобы своевременно заканчивать дезактивацию или включать дополнительные способы ограничения диффузии трития к внешней стенке во избежание его выхода в окружающую среду, необходим непрерывный контроль концентрации трития в камере реактора как после окончания работы реактора, так и до начала, в процессе, а также после завершения дезактивации. Необходимость измерений количества газообразного трития в камере связана с процессами распространения трития в другие материалы и образуемую пыль. Для выполнения поставленной задачи, очевидно, потребуется разработка специальных диагностических устройств, способных выполнять измерения в больших радиационных полях нейтронного, γ -, α - и β -излучений.

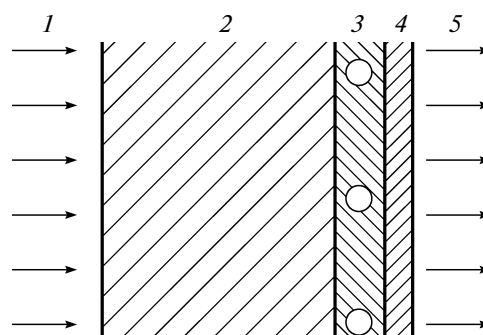


Рис. 9. Многослойная структура защиты от миграции трития на внешнюю сторону вакуумной камеры и выхода его в окружающую среду: 1 – поток трития на стенку, 2 – стенка камеры из нержавеющей стали (SS316L), 3 – слой металла с высоким коэффициентом диффузии трития, в котором выполнены отверстия для прокачки воды (D₂O) или газовой смеси (0.95Ag + 0.05D₂) с целью дополнительного отбора трития; 4 – слой SS316L; 5 – выход трития в окружающую среду.

ВЫВОДЫ

Измерения параметров диффузии в процессе термодезактивации насыщенных тритием в течение 24 ч образцах показали уменьшение запаса трития в ~70 раз.

Обнаружено, что основная доля выходящего из образца трития (>90%) приходится на фазу разогрева образца до 800°C (~2 ч).

Установлено, что в процессе дезактивации образца при толщине насыщенного тритием слоя много меньше толщины образца эффективность процесса дезактивации за временной фазой излома скорости выходящего потока существенно снижается, что связано с распространением трития на большую глубину. В этом случае процесс дезактивации необходимо завершать, поскольку возникает опасность выхода трития в окружающую среду.

Выполненный эксперимент показал, что более предпочтительна температура дезактивации камеры ~500°C.

Эксперимент показал необходимость создания системы отбора трития в камере реактора во избежание его выхода в окружающую среду, а так-

же контроля концентрации трития на внутренней и внешней стороне вакуумной камеры реактора.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, проект № 09-08-00187.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Reiter F., Forcey K., Gervasini G.* Joint Research Centre Report EUR 15217 EN Commission of the European Communities. ISPRA, 1993.
2. *Маркин А.И., Полулях Е.П., Черковец В.Е.* // ПТЭ. 1999. № 5. С. 108.
3. *Cherkovets V.E., Azizov E.A., Markin A.I. et al.* // Fusion Science and Technology. 2005. V. 48. № 1. P. 374.
4. *Маркин А.И., Азизов Э.А., Сыромятников Н.И. и др.* // Сб. докладов XI-й Всероссийской (международной) научной конференции "Физико-химические процессы при селекции атомов и молекул". Звенигород: ЦНИИАтоминформ, 2006. С. 231.
5. *Маркин А.И., Азизов Э.А., Сыромятников Н.И. и др.* // Инженерная физика. 2008. № 3. С. 16.
6. *Perevezentsev A.N., Bell A.C., Rivkis L.A. et al.* // Journal of Nuclear Materials. 2008. V. 372. Issues 2–3. P. 263.
7. *Бокиштейн Б.С.* Диффузия в металлах. М.: Металлургия, 1978.