

УДК 621.039.621.03; 621.039.5

## ДЕТРИТИЗАЦИЯ ОБЛУЧЁННОГО БЕРИЛЛИЯ РАЗЛИЧНЫХ МАРОК МЕТОДОМ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНОЙ ДЕГАЗАЦИИ

*Т.В. Кульсартов<sup>1</sup>, И.Л. Тажибаяева<sup>1</sup>, Ю.Н. Гордиенко<sup>1</sup>, Ж.А. Заурбекова<sup>1</sup>, Е.Т. Коянбаев<sup>1</sup>,  
И.М. Кукушкин<sup>1</sup>, Е.А. Кенжин<sup>1</sup>, А.О. Муканова<sup>2</sup>, Д.С. Дюсамбаев<sup>3</sup>, А.А. Шаймерденов<sup>3</sup>, Л.В. Чекушина<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> *Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

<sup>2</sup> *НИИ «Экспериментальной и теоретической физики КазНУ им. аль-Фараби», Алматы, Казахстан*

<sup>3</sup> *Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан*

В работе приводятся исследования параметров взаимодействия гелия и трития с облучённым бериллием различных марок. Актуальность проводимых исследований связана с необходимостью решения задачи детритизации накопленных бериллиевых материалов, а также с целью расширения представлений о механизмах процессов взаимодействия трития с бериллием, который планируется использовать в будущих термоядерных реакторах (ТЯР). Работа включает в себя ряд этапов, таких, как проведение термодесорбционных исследований температурно-программируемой десорбции образцов облучённого бериллия трёх исследуемых марок, обработка и анализ экспериментальных результатов, определение основных параметров взаимодействия трития с облучённым бериллием, необходимых для оценки возможности использования процедуры высокотемпературной дегазации в качестве метода детритизации, а также для расчёта распределения трития в бериллиевых материалах ТЯР.

**Ключевые слова:** термоядерный синтез, облучённый бериллий, метод термодесорбционной спектроскопии (ТДС), детритизация.

## DETRITIATION OF DIFFERENT IRRADIATED BERYLLIUM GRADES USING HIGH-TEMPERATURE DEGASSING METHOD

*T.V. Kulsartov<sup>1</sup>, I.L. Tazhibayeva<sup>1</sup>, Yu.N. Gordienko<sup>1</sup>, Zh.A. Zaurbekova<sup>1</sup>, Ye.T. Koyanbaev<sup>1</sup>, I.M. Kukushkin<sup>1</sup>,  
Ye.A. Kenzhin<sup>1</sup>, A.O. Mukanova<sup>2</sup>, D.S. Dyusambayev<sup>3</sup>, A.A. Shaimerdenov<sup>3</sup>, L.V. Chekushina<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> *Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan*

<sup>2</sup> *Research Institute of Experimental and Theoretical Physics, Kazakh State University Al-Farabi, Almaty, Kazakhstan*

<sup>3</sup> *Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan*

This work presents the investigation of helium and tritium interaction with irradiated beryllium. The urgency of conducted research is connected with solving the problem of stored beryllium material detritiation, and also explanation of mechanisms of the processes occurring during tritium interaction with beryllium which is planned to be used in the future fusion power reactors. The study includes a number of stages such as: thermo-desorption experiments on gas release from irradiated beryllium of different grades, processing and analysis of experiment results; definition of the basic parameters of tritium interaction with irradiated beryllium, required for estimation of high-temperature degassing procedure used as a detritiation method, and also for calculation of tritium distribution in beryllium materials of fusion reactors.

**Key words:** nuclear fusion, irradiated beryllium, the method of thermodesorption spectroscopy, detritiation.

### ВВЕДЕНИЕ

Одной из проблем термоядерного синтеза является выбор конструкционных материалов, способных выдержать в процессе работы ТЯР высокие термические и нейтронные нагрузки в стационарных режимах, а также при срывах плазмы. В настоящее время активно начаты работы по реализации проекта ИТЭР, в котором плазмообращённым материалом, а также материалом для размножения нейтронов в некоторых испытательных модулях бланкета будет бериллий. В процессе работы ИТЭР бериллий будет подвержен значительным радиационным повреждениям под воздействием нейтронного излучения. Облучение бериллия быстрыми нейтронами приводит к образованию и накоплению в нём радиационных дефектов, а также ядер гелия и трития, которые образуются в нём в результате протекания ядерных реакций на атомах бериллия.

До сих пор полная картина процессов взаимодействия трития с бериллием не является очевидной, существует значительное расхождение по определённым параметрам взаимодействия изотопов водорода с бериллием для данных, полученных различными авторами [1—7]. Целями проводимых исследований являлись изучение поведения трития и определение эффективных коэффициентов диффузии и энергии активации диффузии трития в облучённом бериллии различных марок.

Эти данные позволят определить распределение трития в конструкции ТЯР, что необходимо для оптимизации процессов извлечения, утилизации и дальнейшего использования трития (например, выбора режимов прогрева узлов установки с целью их детритизации).

## ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

В качестве объектов исследования в данной статье выбраны три сорта бериллия — S-65H, I-220H и S-200F, первые два из которых изготовлены методом горячего изостатического прессования, а третий — с содержанием оксида бериллия до 1,0% — методом вакуумного горячего прессования. Содержание оксида бериллия в образце сорта I-220H довольно высокое (1,9%), в образце S-65H — самое минимальное из всех рассматриваемых нами (0,7%). Образцы бериллия сорта S-200F и I-220H выбраны для сравнения с предлагаемым для использования в реакторе ИТЭР сортом S-65, модификации которого S-65C и S-65H не отличаются друг от друга способом изготовления (ГИП), небольшое различие имеется только в химическом составе, причём содержание чистого бериллия у сорта S-65H (99,4%) выше, чем у S-65C (99,0%). Ввиду отсутствия высокопоточных источников термоядерных нейтронов обычно используются высокопоточные исследовательские реакторы на тепловых нейтронах для моделирования влияния облучения на конструкционные материалы ТЯР [8]. В связи с этим в настоящей статье приводятся результаты термодесорбционных экспериментов (ТДС) по исследованию газовыделения из образцов бериллия марок S-65H, S-200F, I-220H, облучённых в исследовательском реакторе ВВР-К при температуре 70 °С до флюенса по быстрым нейтронам  $\sim 1 \cdot 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>. Спектр нейтронов реактора и плотность потока приведены в табл. 1.

Таблица 1. Энергетический спектр нейтронов реактора ВВР-К и соответствующие плотности потоков нейтронов

| Верхняя граница энергетического интервала, эВ | Средняя плотность потока нейтронов, см <sup>-2</sup> ·с <sup>-1</sup> |
|---|---|
| $6,00 \cdot 10^{-1}$                          | $8,28 \cdot 10^{13}$  |
| 1,00  | $2,54 \cdot 10^{12}$  |
| 1,00·10                                       | $1,10 \cdot 10^{13}$  |
| $1,00 \cdot 10^2$                             | $1,10 \cdot 10^{13}$  |
| $1,00 \cdot 10^3$                             | $1,21 \cdot 10^{13}$  |
| $1,00 \cdot 10^4$                             | $1,21 \cdot 10^{13}$  |
| $1,00 \cdot 10^5$                             | $1,55 \cdot 10^{13}$  |
| $1,00 \cdot 10^6$                             | $3,20 \cdot 10^{13}$  |
| $1,40 \cdot 10^6$                             | $6,62 \cdot 10^{12}$  |
| $1,50 \cdot 10^6$                             | $1,66 \cdot 10^{12}$  |
| $2,80 \cdot 10^6$                             | $1,23 \cdot 10^{13}$  |
| $5,00 \cdot 10^6$                             | $6,07 \cdot 10^{12}$  |
| $1,00 \cdot 10^7$                             | $1,66 \cdot 10^{12}$  |

**Бериллий марки S-65H.** Исследуемые образцы имели форму диска диаметром  $10 \pm 0,1$  и толщиной  $1,5 \pm 0,1$  мм. Мощность дозы от облучённого образца при размещении вплотную составляла 458 мкЗв/ч (на расстоянии 0,3 м  $\sim 14$  мкЗв/ч).

**Бериллий марки S-200F.** Образцы имели форму диска диаметром  $9,98 \pm 0,1$  и толщиной  $1,51 \pm 0,1$  мм. Масса образца составляла 218,3 мг, мощность дозы от облучённого образца при размещении вплотную была 571 мкЗв/ч (на расстоянии 0,3 м  $\sim 23$  мкЗв/ч).

**Бериллий марки I-220H.** Бериллиевый образец имел форму диска диаметром  $10,51 \pm 0,1$  и толщиной  $1,51 \pm 0,1$  мм. Мощность дозы от облучённого образца при размещении вплотную составляла 460 мкЗв/ч (на расстоянии 0,3 м  $\sim 15$  мкЗв/ч).

Для проведения экспериментов с разными скоростями нагрева образцов бериллия исходные бериллиевые образцы механическим способом были разрезаны на четыре части. Схема резки образцов показана на рис. 1.

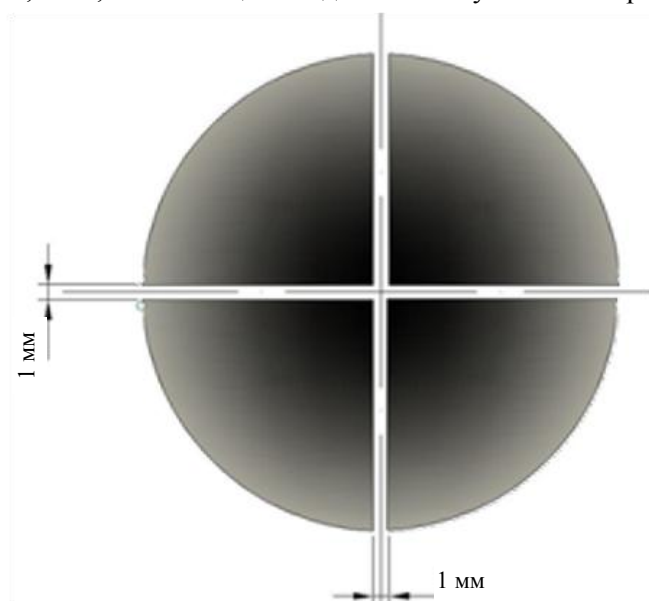


Рис. 1. Схема резки бериллиевых образцов

Химический состав всех исследуемых марок бериллия представлен в табл. 2. Все марки бериллия были изготовлены фирмой Materion Brush Beryllium & Composites (США) и предоставлены нам для исследований JAEA (Япония).

Таблица 2. Химический состав образцов бериллия

| Марка  | Массовая доля примесей, % |     |       |      |      |      |       | Другие металлы, элементы |
|--------|---------------------------|-----|-------|------|------|------|-------|--------------------------|
|        | Be                        | BeO | C     | Fe   | Al   | Si   | Mg    |                          |
| S-65H  | 99,44                     | 0,7 | <0,01 | 0,08 | 0,04 | 0,02 | <0,01 | <0,04                    |
| S-200F | 99,00                     | 1,0 | 0,06  | 0,12 | 0,05 | 0,03 | <0,01 | <0,04                    |
| I-220H | 98,6                      | 1,9 | 0,03  | 0,06 | 0,01 | 0,02 | <0,01 | <0,04                    |

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Эксперименты по термодесорбции образцов облучённого бериллия проводились в Институте атомной энергии Национального ядерного центра Республики Казахстан (ИАЭ НЯЦ РК, г. Курчатов), на экспериментальной установке ВИКА. Принципиальная схема экспериментальной установки представлена на рис. 2, внешний вид — на рис. 3.

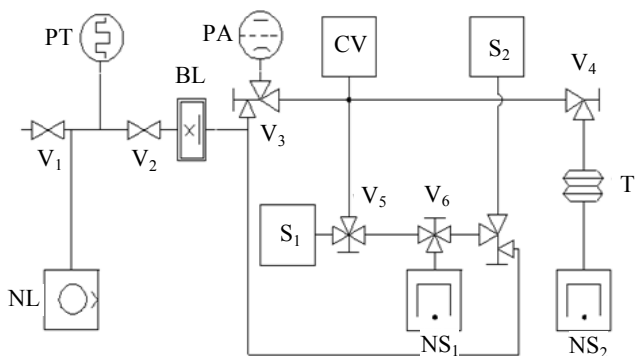


Рис. 2. Принципиальная схема экспериментальной установки ВИКА: PA — вакуумметр ионизационный; PT — вакуумметр термопарный; NS<sub>1</sub> — магниторазрядный насос НОРД-100; V — вакуумный кран; NS<sub>2</sub> — магниторазрядный насос НОРД-250; NL — форвакуумный насос НВР-5ДМ; BL — азотная ловушка; S<sub>1</sub> — омегатронный датчик (омега-лампа РМО-13 масс-спектрометра ИПДО-2); S<sub>2</sub> — датчик квадрупольного анализатора остаточных газов RGA-100; CV — рабочая камера; T — металлорукав

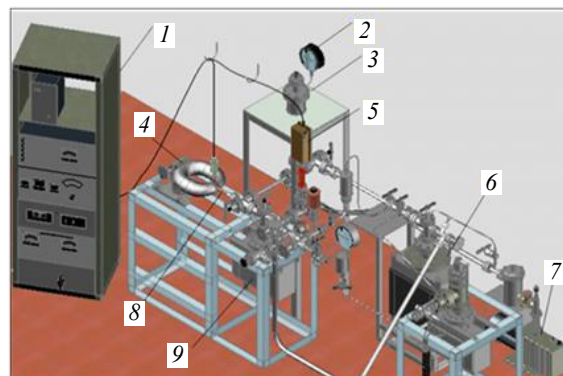


Рис. 3. Внешний вид установки ВИКА: 1 — стойка ВИШ-НЯ с приборами; 2 — манометр для контроля давления воды; 3 — вакуумная камера; 4 — магнит; 5 — масс-спектрометр RGA-100; 6 — насос НОРД-250; 7 — насос НВР-5ДМ с азотной ловушкой; 8 — омегатронная лампа РМО-13 масс-спектрометра ИПДО-2; 9 — насос НОРД-100

#### Технические характеристики установки ВИКА:

|  |                  |
|--|------------------|
| Интервал рабочих температур, °С ...  | От 30 до 1500    |
| Давление в измерительном тракте при температуре тигля 1500 °С, Па ...          | 10 <sup>-5</sup> |
| Точность автоматического поддержания температуры относительно заданной, °С ... | ±0,5             |
| Диапазон скоростей нагрева образца, °С/мин ...                                 | От 2 до 50       |

Установка состоит из рабочей камеры, системы откачки и информационно-измерительной системы (ИИС).

Для обеспечения требуемого давления в рабочей камере установки использована дифференциальная система откачки, включающая в себя форвакуумный насос НВР-5ДМ с азотной ловушкой и два магниторазрядных насоса НОРД-100 и НОРД-250. Форвакуумный насос служит для предварительной откачки газов из рабочей камеры после загрузки образца в тигель, магниторазрядный насос НОРД-250 используется для откачки рабочей камеры и измерительного тракта в процессе отжига после загрузки образцов, насос НОРД-100 служит для создания высокого вакуума в камере и измерительной части экспериментальной установки непосредственно в процессе эксперимента.

Рабочая камера изготовлена из нержавеющей стали 12Х18Н10Т. Стенки камеры охлаждаются водой, давление которой контролируется с помощью манометра (см. рис. 3). Внутри камеры смонтирован

нагреватель, представляющий собой танталовую пластину с закреплённым на ней танталовым тиглем (рис. 5), в который загружается исследуемый образец. Температура образца регистрируется двумя вольфрам-рениевыми термопарами ВР-5/20, закреплёнными на краях тигля и заведёнными в камеру через герморазъём.

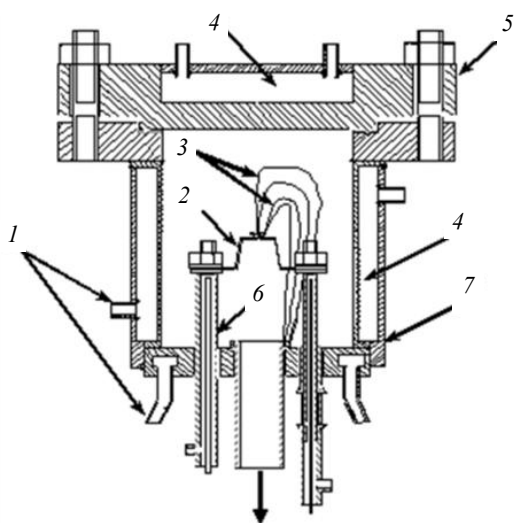


Рис. 4. Вакуумная рабочая камера установки ВИКА: 1 — патрубки водяного охлаждения; 2 — танталовый нагреватель с тиглем; 3 — термопары ВР; 4 — контур водяного охлаждения; 5 — крышка вакуумной камеры; 6 — тоководы; 7 — корпус вакуумной камеры

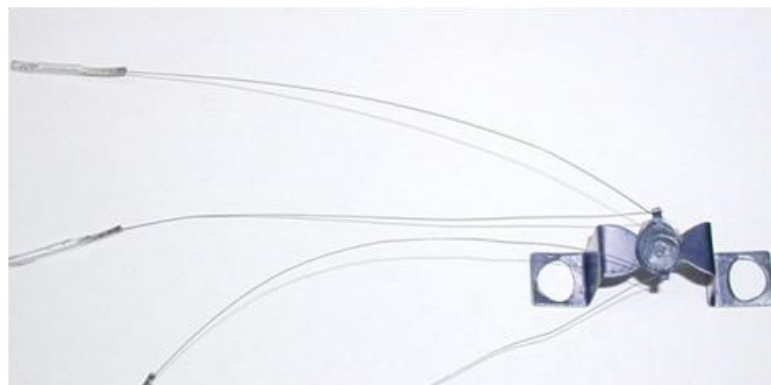


Рис. 5. Танталовый тигель с двумя термопарами, закреплённый на нагревательном элементе

Экспериментальная установка ВИКА автоматизирована. Аналоговые сигналы масс-спектрометра и термопар после аналого-цифрового преобразования поступают в виде цифрового кода в компьютер ПК IBM-PC, где обрабатываются и записываются в файл в виде таблицы. Система управления нагревом образца представляет собой комплект программных и аппаратных средств, предназначенных для ввода сигналов первичных преобразователей (датчиков) в виде напряжения, регистрации и представления данных в виде физических величин и подачи управляющего сигнала на высокоточный регулятор температуры (ВРТ-3). Система управления нагревом обеспечивает возможность регулирования скорости нагрева образца в интервале от 2 до 50 °С/мин, сбор и регистрацию текущей измерительной информации с частотой 1 Гц в режиме реального времени, отображение полученной информации на экране монитора, регистрацию измерительной информации в виде файла-регистрации на накопитель компьютера ПК IBM-PC.

## МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

Исследования проводились методом термодесорбционной спектроскопии (ТДС). Методика проведения исследований заключалась в следующем: вырезанный образец облучённого бериллия обезжиривался, загружался в тигель рабочей камеры экспериментальной установки.

После этого проводилась дегазация образца при температуре примерно 150 °С в течение 4 ч при непрерывной откачке вакуумным магниторазрядным насосом НОРД-250. Затем образец охлаждался до комнатной температуры, и далее уже проводился эксперимент по линейному нагреву бериллиевого образца до температуры плавления бериллия ( $T \approx 1283$  °С) при постоянной откачке выделяющихся газов из объёма рабочей камеры насосом НОРД -100.

Регистрация изменения парциальных давлений исследуемых газов — гелия  $^3\text{He}$ ,  $^4\text{He}$  и трития проводилась квадрупольным масс-спектрометром. Исследуемые образцы нагревались со скоростями нагрева 10, 20, 40 °С/мин.

## РЕЗУЛЬТАТЫ МИКРОСТРУКТУРНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

К настоящему времени проведены исследования микроструктуры исследуемых облучённых образцов до экспериментов по ТДС. Микроструктуры бериллия в образцах S-65H и S-200F наиболее близки между собой и отличаются большей упорядоченностью и однородностью, границы зёрен декорированы выделениями окиси бериллия (рис. 6, *a*, *б*). Микроструктура в образце I-220H характеризуется большой неоднородностью размеров зёрен и их распределения в материале. Сетка выделений окислов бериллия по границам зёрен в этом материале более обширная и разветвлённая (рис. 6, *в*). Результаты микроструктурного анализа для исследуемых марок бериллия подтверждаются данными из других литературных источников [1].

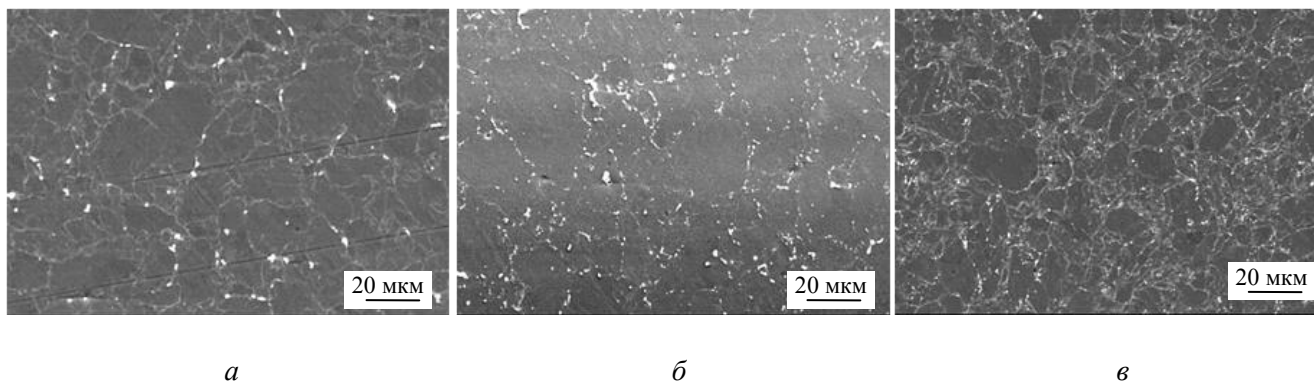


Рис. 6. Результаты микроструктурных исследований облучённого бериллия: *a* — поверхность образца S-65H, средний диаметр зёрен 11 мкм; *б* — поверхность образца S-200F, средний диаметр зёрен 15 мкм; *в* — поверхность образца I-220H, средний диаметр зёрен 7,9 мкм

На рис. 7 для сравнения приведены фотографии электронно-микроскопических исследований необлучённых образцов бериллия.

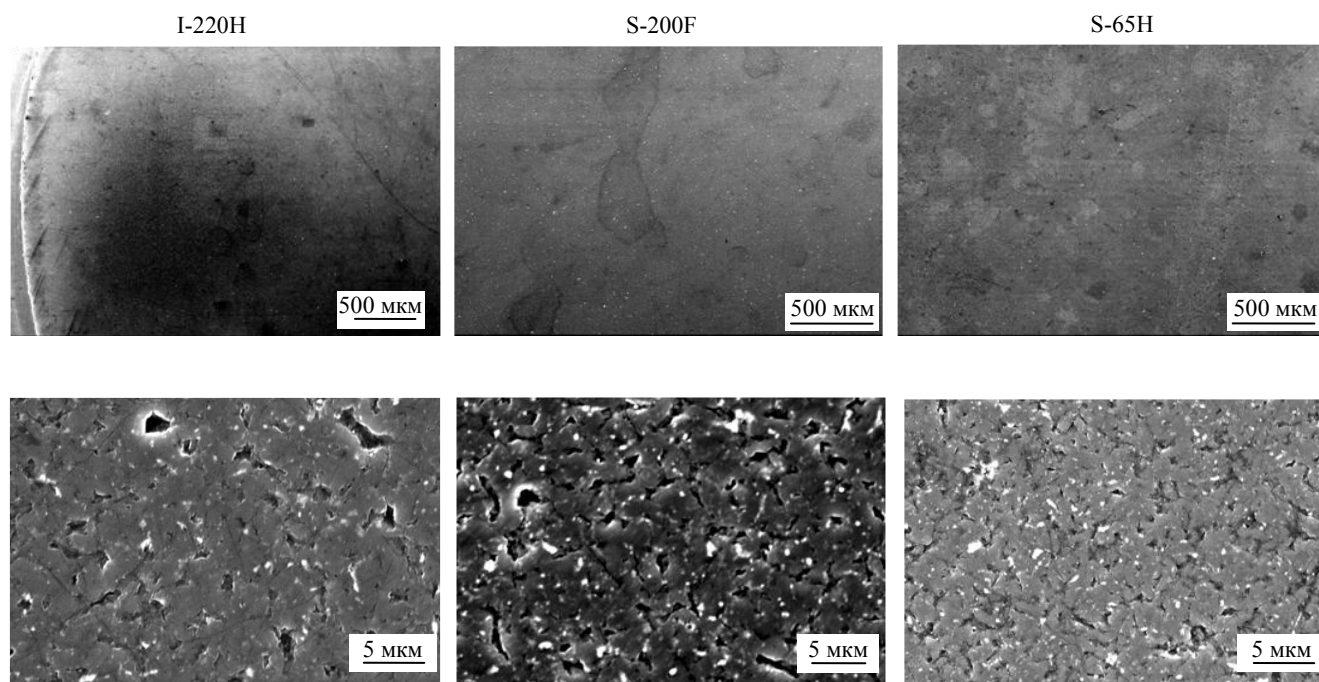


Рис. 7. Электронно-микроскопические исследования необлучённых образцов бериллия

Более детальное сравнение микроструктуры бериллиевых образцов до и после облучения будет являться отдельным предметом исследования.



### РЕЗУЛЬТАТЫ ТДС-ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ АНАЛИЗ

В ходе проведения ТДС-экспериментов с образцами облучённого бериллия были получены температурные зависимости изменения парциальных давлений исследуемых газов в камере установки, представленные на рис. 8—12.

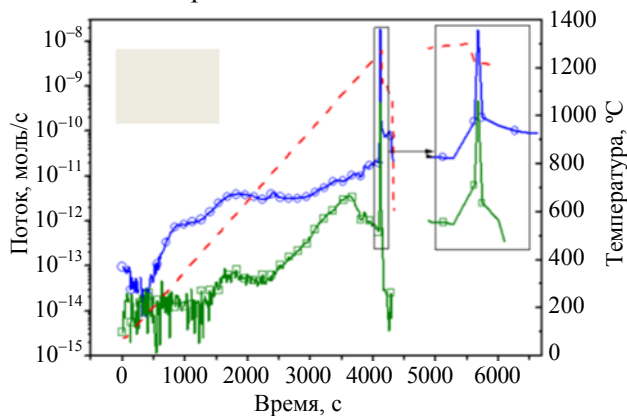


Рис. 8. Временная зависимость выделения трития и гелия из образца бериллия S-65H (скорость нагрева 20 °C/мин): □ — M6; ○ — M4

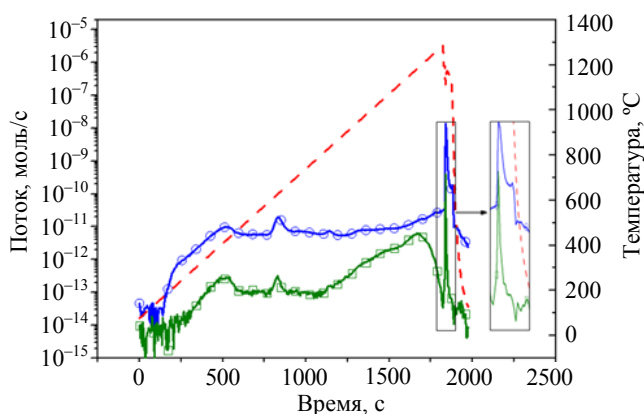


Рис. 9. Временная зависимость выделения трития и гелия из образца бериллия S-65H (скорость нагрева 40 °C/мин): □ — M6; ○ — M4

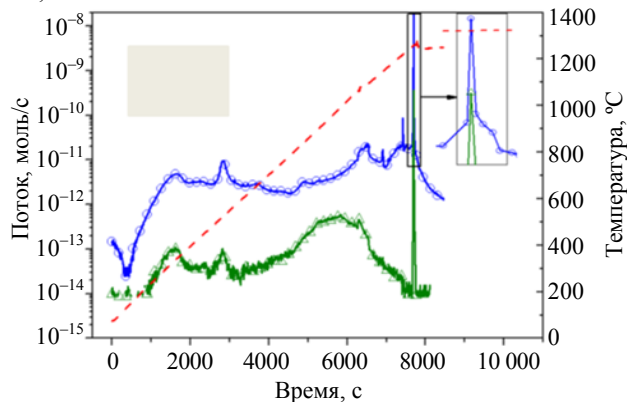


Рис. 10. Временная зависимость выделения трития и гелия из образца бериллия S-65H (скорость нагрева 10 °C/мин): ▲ — M6; ○ — M4

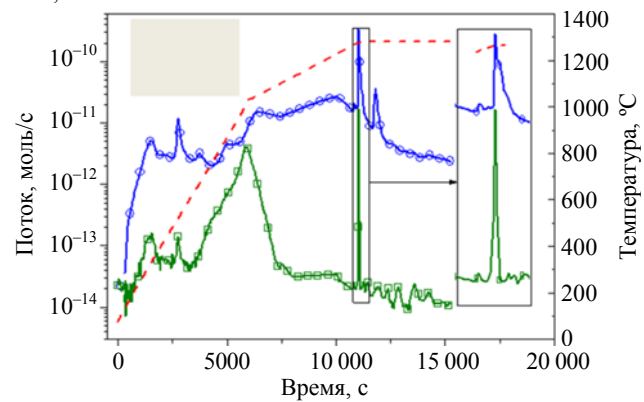


Рис. 11. Временная зависимость выделения трития и гелия из образца бериллия S-200F (скорость нагрева 10 °C/мин): □ — M6; ○ — M4

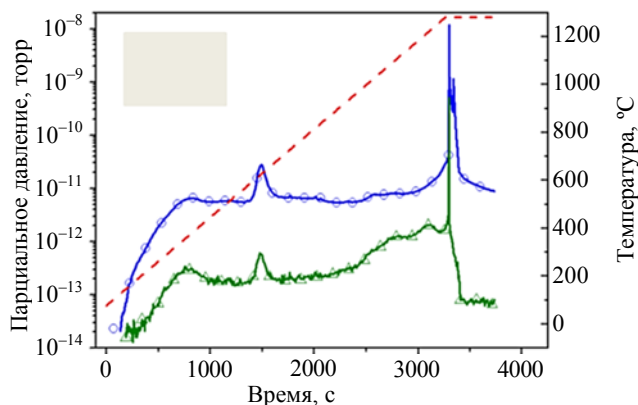


Рис. 12. Временная зависимость выделения трития и гелия из образца бериллия I-220N (скорость нагрева 20 °C/мин): ▲ — M6; ○ — M4

По полученным данным были оценены количества трития  $T_2$  и гелия  $^4\text{He}$  в образцах облучённого бериллия, которые достаточно хорошо совпали между собой в пределах ошибки для всех марок бериллия и составили  $25 \pm 3 \text{ млн}^{-1}$  (ат.) изотопа  $^4\text{He}$  и  $1,3 \pm 0,3 \text{ млн}^{-1}$  (ат.)  $T_2$ . Содержание изотопа  $^3\text{He}$ , как и предполагалось, оказалось незначительным и составило менее  $0,02 \text{ млн}^{-1}$  (ат.). Результаты представлены в табл. 3.

Характер ТДС-зависимостей позволил сделать выводы, качественно характеризующие процесс выделения гелия и трития из исследованных марок облучённого бериллия, которые заключается в следующем:

Т а б л и ц а 3. Результаты определения общего количества наработанного трития и гелия в облучённом бериллии

| № образца | Марка бериллия | Масса, г | Скорость нагрева, °C/мин | Тритий               |                         | Гелий                |                         |
|-----------|----------------|----------|--------------------------|----------------------|-------------------------|----------------------|-------------------------|
|           |                |          |                          | Моль $T_2$           | Млн <sup>-1</sup> (ат.) | Моль $^4\text{He}$   | Млн <sup>-1</sup> (ат.) |
| 1         | S-65H          | 0,055    | 20                       | $4,55 \cdot 10^{-9}$ | 1,5                     | $1,41 \cdot 10^{-7}$ | 24                      |
| 2         | S-65H          | 0,051    | 40                       | $3,37 \cdot 10^{-9}$ | 1,2                     | $1,40 \cdot 10^{-7}$ | 25,3                    |
| 3         | S-65H          | 0,049    | 10                       | $2,97 \cdot 10^{-9}$ | 1,1                     | $1,45 \cdot 10^{-7}$ | 27                      |
| 4         | S-200F         | 0,054    | 10                       | $4,45 \cdot 10^{-9}$ | 1,5                     | $1,54 \cdot 10^{-7}$ | 26                      |
| 5         | I-220N         | 0,054    | 20                       | $4,23 \cdot 10^{-9}$ | 1,4                     | $1,28 \cdot 10^{-7}$ | 22                      |

— гелий при равномерном нагреве в основном выделяется в процессе плавления бериллиевого образца либо при температурах, близких к температуре плавления, при значительном времени выдержки (более 1 ч при температуре выше 1150 °С). Данный факт предсказуем, так как гелий обладает гораздо более низким коэффициентом диффузии в бериллии, чем тритий;

— тритий выделяется как во время плавления (для исследуемых образцов бериллия марок S-65H, I-220H при плавлении выделяется около 50% накопленного трития, в то время как для образцов S-200F при плавлении выделяется около 10% накопленного трития), так и в низкотемпературной области, которую можно условно разбить на два интервала: первые очень незначительные, но заметные пики выделения трития наблюдаются для всех исследованных марок бериллия при температуре около 300—320 °С и 500 °С, причём при температуре 500 °С также наблюдается незначительное выделение гелия. Первое выделение (при температуре около 300—320 °С) связано с процессом выхода трития из приповерхностных пор и полых образований на поверхности бериллия. Второе выделение (при температуре около 500 °С) определяется некоторым общим растрескиванием образца и выходом газа (здесь как гелия, так и трития — по образующимся свободным путям из полостей и трещин в теле образца). Во втором интервале температур для бериллия марки S-65H (выше 700 °С) наблюдается диффузионное выделение трития. Это утверждение отчасти вытекает из анализа пиков выделения трития. Как видно на рис. 10, пики ассиметрично уширяются в область низких температур, причём положение максимума пика сдвигается в сторону высоких температур при увеличении темпа нагрева исследуемых образцов.

Интересно отметить, что для бериллия сорта S-200F наблюдается гораздо более эффективное выделение трития, как видно, например, на рис. 11, чем из остальных сортов исследованного бериллия.

## РАСЧЁТ КОЭФФИЦИЕНТОВ ДИФфуЗИИ ТРИТИЯ В БЕРИЛЛИИ РАЗЛИЧНЫХ МАРОК

Для анализа была использована модель, учитывающая возможность необратимого захвата диффундирующего трития некоей ловушкой (гелиевые пузырьки, кислородные ловушки и пр.). Предположение о необратимом захвате было сделано на основе характера выделения газов в ТДС-спектрах: выделение основного количества газа наблюдается при температуре, близкой к плавлению, соответственно это отвечает предположению, что весь тритий и гелий связан в ловушках до плавления.

Уравнение для модели диффузии в присутствии ловушек с необратимым захватом

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D(t) \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - k_1 C. \quad (1)$$

Дополнительно определяются параметры, также зависящие от времени и температуры:

$$\begin{aligned} D(t) &= D_0 \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right); \\ k_1(t) &= k_{10} \exp\left(-\frac{E_D}{RT}\right); \end{aligned} \quad (2)$$

$$T = T_0 + \beta t,$$

где  $T$  — температура образца, К;  $\beta$  — скорость нагрева образца (при линейном нагреве);  $E_D$ ,  $E_T$  — энергия активации диффузии и захвата в ловушки соответственно, кДж/моль;  $R$  — универсальная газовая постоянная.

Из начальных условий известна концентрация диффузанта в образце  $C_0(x, t = 0)$ . В качестве приближенной модели были применены граничные условия 1-го рода, удовлетворяющие условиям непрерывной откачки диффузанта  $C(x = 0, t) = 0$  и  $C(x = l, t) = 0$ , где  $l$  — толщина образца.

На основе этой модели было проведено моделирование ТДС-зависимостей и получены данные по параметрам диффузии трития, которые сведены в табл. 4 и представлены на рис. 13. Эти значения оказались завышены и соответствовали данным по диффузии пузырьков газовых комплексов в бериллии, описанным в работе [5]. Из табл. 4 видно, что они удовлетворительно совпали между собой для образцов бериллия марок S-65H и I-220H. Эффективный коэффициент диффузии трития в образцах марки S-200F оказался примерно в два раза выше, чем для других марок бериллия. Погрешность определялась в ходе метода подгонки, как максимально допустимое отклонение экспериментальных кривых от расчётных (~20%).

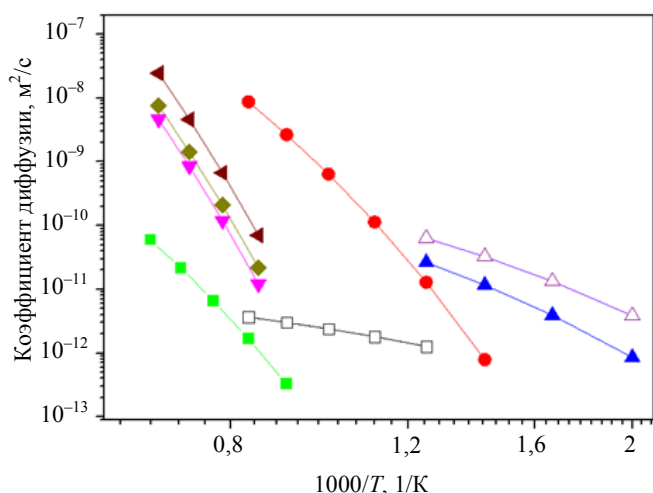


Рис. 13. Коэффициент диффузии трития в бериллии. Литературные данные: ■ — Rabaglino,  $D = 10^{-4} \exp(-178,6/RT)$  [5]; □ — Jones and Gibson,  $D = 3 \cdot 10^{-11} \exp(-21/RT)$  [4]; ● — Tazhibayeva,  $D = 4 \cdot 10^{-3} \exp(-130/RT)$  [6]; ▲ — Abramov, extra grade,  $D = 6,7 \cdot 10^{-9} \exp(-31/RT)$ ; ▲ — Abramov, high grade,  $D = 8 \cdot 10^{-9} \exp(-38/RT)$  [3]. Наши данные: ▼ — I-220H,  $D = 60 \exp(-285/RT)$ ; ◆ — S-65H,  $D = 65 \exp(-280/RT)$ ; ◀ — S-200F,  $D = 110 \exp(-280/RT)$

Т а б л и ц а 4. Параметры взаимодействия трития с образцами S-65H, I-220H, S-200F

| Образцы бериллия | Эффективный коэффициент диффузии $D_0$ , м²/с | Энергия активации диффузии $E_D$ , кДж/моль |
|------------------|---|---|
| S-65H            | 65  | 280   |
| I-220H           | 60  | 285   |
| S-200F           | 110   | 280   |

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ ИССЛЕДОВАНИЯ

Движение газовых пузырьков с тритием внутри облучённого бериллия можно разбить на две стадии: диффузия по объёму до границ зерна и диффузия по границам зёрен бериллия. Причём диффузия по границам зерна является достаточно быстрым процессом, и основное время выделения трития из образца тратится на выход пузырьков газа на границы зёрен, которые покрыты непроницаемой плёнкой в виде окиси бериллия  $\text{BeO}$ , служащей диффузионным барьером.

При высоких температурах в бериллии начинается процесс рекристаллизации зёрен, который также затруднён наличием окисной плёнки бериллия. Выше температуры 700 °C плёнка  $\text{BeO}$  начинает разрушаться, коагулируясь в отдельные включения, что даёт свободу процессу рекристаллизации.

В ходе микроструктурных исследований было обнаружено, что для образцов марок S-65H и I-220H, изготовленных методом горячего изостатического прессования, размер зерна меньше, чем для марки S-200F, изготовленного методом горячего вакуумного прессования, окись бериллия ( $\text{BeO}$ ) лежит более равномерной плёнкой по поверхности в отличие от микроструктуры образца S-200F, где  $\text{BeO}$  располагается в виде отдельных включений. На различие микроструктуры этих образцов, по всей видимости, влияет метод изготовления. Согласно данным И. Папирова [9] на поверхности зёрен мелкозернистых образцов при изготовлении методом горячего изостатического прессования (ГИП) остаётся множество дислокаций, для которых требуются дополнительные затраты энергии на аннигиляцию и которые оказывают дополнительное сопротивление перемещению границ в процессе рекристаллизации. Образец S-200F изготавливался в условиях вакуума, что избавило его от лишних загрязнений, вследствие чего в нём рекристаллизация протекает свободно и зёрна растут с большой скоростью.

При этом становится очевидным, что при росте зерна пузырьки трития в зёрнах образца S-200F начинают более активно перемещаться, быстро оказываются на границах зёрен, выходят на поверхность и выделяются. Это объясняет эффективное выделение трития путём диффузии ниже температуры плавления.

Сравнивая полученные результаты с работами по ТДС-исследованиям облучённого бериллия [10—12], можно сделать вывод о том, что механизм выделения гелия и трития существенно зависит от дозы облучения бериллия. В указанных работах бериллий был облучён до флюенсов, существенно более высоких



( $\sim 3 \cdot 10^{21}$ ,  $1 \cdot 10^{22}$  н/см<sup>2</sup>), чем в настоящей работе ( $\sim 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>). Предложенный механизм выделения трития и гелия при высоких флюенсах был следующий: наблюдался взрывной характер выхода трития и гелия из материала, который был вызван формированием открытой пористости в результате коалесценции пузырей и растрескиванием, обусловленным ростом напряжений при распухании бериллия. В экспериментах с бериллием, облучённых до флюенсов выше  $3 \cdot 10^{21}$ , наблюдались такие эффекты, как:

- существенное снижение температуры выделения трития при увеличении скорости нагрева исследуемого образца ( $\sim 700$  °С при скорости нагрева  $14$  °С/с,  $\sim 400$  °С при скорости нагрева  $90$  °С/с);
- заметная разница между пиками выделения трития и гелия.

Как следует из настоящей работы, для бериллия, облучённого до существенно меньшего флюенса, механизм выделения трития в меньшей степени связан с разрушением и растрескиванием, а в большей степени с растворением оксидной плёнки ВеО на границах зёрен и последующей диффузией трития по границам зёрен.

То, что не происходит заметного растрескивания при нагреве облучённых до флюенса  $\sim 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> образцов бериллия, подтверждается ещё тем фактом, что выделение гелия происходит в основном при температуре плавления образца.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполненных работ по изучению газовыделения из образцов облучённого бериллия была проведена серия ТДС-экспериментов с тремя марками облучённого бериллия, получены временные и температурные зависимости выделения потока гелия и трития. Приведённые в нашей работе сорта бериллия S-200F и I-220H сравнены с предлагаемым для использования в реакторе ИТЭР сортом S-65, модификации которого S-65C и S-65H не отличаются друг от друга способом изготовления (ГИП), а небольшое различие имеется только в химическом составе, причём содержание чистого бериллия в S-65H (99,4%) выше, чем в S-65C (99,0%)

Для всех образцов облучённого бериллия оценены количества  $T_2$  и  $^4\text{He}$ , которые достаточно хорошо совпали между собой в пределах ошибки для всех марок бериллия и составили  $25 \pm 3$  млн<sup>-1</sup> (ат.) изотопа  $^4\text{He}$  и  $1,3 \pm 0,3$  млн<sup>-1</sup> (ат.)  $T_2$ .

При выделении трития и гелия для всех образцов бериллия зафиксирована общая особенность — это выделение в трёх температурных областях: незначительные пики трития при  $320$  °С, пики трития и гелия при  $500$  °С, обусловленные выделением с приповерхностных пор и растрескиванием материала; диффузионные пики трития в интервале температуры от  $900$  до  $1200$  °С — выделение трития и гелия в момент плавления.

Анализ ТДС-спектров показал, что для марки бериллия S-200F основное выделение трития зафиксировано в диффузионном пике, тогда как из двух других марок основная часть трития выделяется при плавлении.

Проведены микроструктурные исследования поверхности бериллиевых образцов трёх марок до ТДС-экспериментов, определены данные по основным характеристикам структуры образцов, в частности, размеры зёрен.

Опираясь на литературные данные, данные микроструктурного анализа и результаты экспериментов по газовыделению, удалось описать механизм выделения трития, принимая во внимание то, что скорость рекристаллизации зёрен бериллия марки S-200F намного превышает скорость рекристаллизации других исследуемых марок бериллия. Ускоренная рекристаллизация зёрен приводит к быстрому выходу газовых пузырьков с тритием.

Проведена обработка спектров выделения трития с помощью модели диффузии с учётом необратимого захвата диффундирующего трития ловушками, в результате чего были определены основные параметры модели и аррениусовские зависимости эффективных коэффициентов диффузии трития в облучённом бериллии.

## REFERENCES

1. **Baldwin D.L., Billone M.C.** Diffusion/desorption of tritium from irradiated beryllium. — *J. Nucl. Mater.*, 1991, vol. 948, pp. 212—215.
2. **Cho S., Abdou M.A.** Analysis of tritium kinetics of SIBELIUS beryllium. — *Fusion Engineering and Design*, 2000, vol. 51, pp. 85—91.
3. **Abramov E., Riehm M.P., Thomson D.A.** Deuterium permeation and diffusion in high purity beryllium. — *J. Nucl. Mater.*, 1990, vol. 175, pp. 90—95.
4. **Jones P., Gibson R.** Hydrogen in beryllium. — *J. Nucl. Mater.*, 1967, vol. 21, pp. 353—354.
5. **Rabaglino E.** Helium and Tritium in Neutron-irradiated Beryllium. Diss. for cand. of eng. sciences scientific degree 0947-8620, defended 20.01.04, appr. 20.07.04. — Karlsruhe, Germany, 2004. 137 p.
6. **Tazhibayeva I.L., Kenzhin E.A., Shestakov V., Chikhray E.V., Klepikov A., Romanenko O.** Hydrogen release from reactor irradiated beryllium. — *J. Nucl. Mater.*, 1996, vol. 233—237, pp. 837—840.
7. **Ronchi C.** On diffusion and precipitation of gas-in-solid. — *J. Nucl. Mater.*, 1987, vol. 148, p. 316.
8. **Sawan M.E.** Damage parameters of structural materials in fusion environment compared to fission reactor irradiation. — *Fusion Engineering and Design*, 2012, vol. 87, pp. 551—555.
9. **Papirov I.I.** Recrystallization of beryllium. — *Vestnik Kharkovskogo universiteta (Herald of Kharkov University)*, NSC «Kharkov Institute of Physics and Technology», 2008, issue 2(38), № 808, pp. 11—24 (in Russian).
10. **Andreev D.V., Biryukov A.Yu., Danelyan L.S., Elistratov N.G., Gureev V.M., Guseva M.I., Kolbasov B.N., Kurochkin Yu.Ya., Nevzorov V.N., Stativkina O.V., Zimin A.M.** Studies of tritium desorption from beryllium and characterisation of erosion products under plasma-beryllium interaction. — *Fusion Engineering and Design*, 1998, vol. 39—40, pp. 465—475.
11. **Andreev D.V., Bespalov V.N., Biryukov A.Yu., Krasikov E.A.** The influence of stationary and cyclic annealings on the structure and swelling of neutron-irradiated beryllium. — *VANT. Ser. Termoyadernyi Sintez (Problems of Atomic Science and Technology. Ser. Thermonuclear Fusion)*, 1998, issue 1—2, pp. 13—21 (in Russian).
12. **Andreev D.V., Bespalov V.N., Biryukov A.Yu., Gurovich B.A., Platonov P.A.** Post-irradiation studies of beryllium reflector of fission reactor. Examination of gas release, swelling and structure of beryllium under annealing. — *J. Nucl. Mater.*, 1996, vol. 233—237, pp. 880—885.

## AUTHORS

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

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

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

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

**Koyanbaev Ye.T.** Institute of Atomic Energy NNC RK, Krasnoarmeyskaya str. 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan;  
erbol@nnc.kz

**Kukushkin I.M.** Institute of Atomic Energy NNC RK, Krasnoarmeyskaya str. 10, 071100 Kurchatov, Kazakhstan;  
kukushkin@nnc.kz

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

**Mukanova A.O.** Research Institute of Experimental and Theoretical Physics, Al Farabi KazNU, Al-Farabi str. 71, Almaty, Kazakhstan; aliyuwka@bk.ru

**Dyusambayev D.S.** Institute of Nuclear Physics, Ibragimov str. 1, 050032 Almaty, Republic of Kazakhstan;  
d.daulet.s@gmail.com

**Shaimerdenov A.A.** Institute of Nuclear Physics, Ibragimov str. 1, 050032 Almaty, Republic of Kazakhstan;  
aashaimerdenov@gmail.com

**Chekushina L.V.** Institute of Nuclear Physics, Ibragimov str. 1, 050032 Almaty, Republic of Kazakhstan;  
chekushinal@gmail.com

Received 22 November 2013  
Problems of Atomic Science and Technology  
Ser. Thermonuclear Fusion, 2014, vol. 37, issue 2, pp. 27—37.