

СТРУКТУРА, СОСТАВ И СВОЙСТВА ОБЛУЧЕННОЙ В РЕАКТОРЕ ВВР-К ЛИТИЕВОЙ КЕРАМИКИ $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 ДЛЯ ТВЕРДОТЕЛЬНОГО КЕРАМИЧЕСКОГО БЛАНКЕТА ТЕРМОЯДЕРНОГО РЕАКТОРА

И.Л. Тажигаева, Т.В. Кульсартов, Е.А. Кенжин (ИАЭ НЯЦ, Республика Казахстан), О.П. Максимкин, Т.А. Доронина, Н.С. Сильягина, Л.Г. Турубарова, К.В. Цай, Д.А. Желтов, В.В. Каширский (ИЯФ НЯЦ, Республика Казахстан), Е.В. Чихрай, В.П. Шестаков, А.А. Куйкабаева (КазНУ), Х. Кавамура, К. Цучия (JAEA, Япония)

Приведены и анализируются результаты комплексных материаловедческих исследований литиевой керамики $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 , облученной в течение 5350 ч в контролируемых условиях в реакторе ВВР-К с учетом влияния наработанного в процессе облучения трития. Изучены изменения плотности, микроструктуры, фазового и химического состава, прочности и микротвердости, определены степень выгорания лития и остаточное содержание трития. Обнаружено значительное влияние радиационно-термического воздействия на структуру и свойства керамических образцов. Показано, что в результате облучения литиевая керамика разупрочняется, причем этот эффект зависит от температуры облучения. Обнаружено радиационное изменение фазового состава литиевой керамики.

STRUCTURE, COMPOSITION AND PROPERTIES OF LITHIUM CERAMIC $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ mole TiO_2 IRRADIATED IN WWR-K REACTOR FOR SOLID CERAMIC BLANKET OF FUSION REACTOR. I.L. TAZHIBAYEVA, T.V. KULSARTOV, E.A. KENZHIN, O.P. MAKSIMKIN, T.A. DORONINA, N.S. SILNYAGINA, L.G. TURUBAROVA, K.V. TSAI, D.A. ZHELTOV, V.V. KASHIRSKIY, E.V. CHIKHRAY, V.P. SHESTAKOV, A.A. KUYKABAEVA, H. KAWAMURA, K. TSUCHIYA. The paper contains and analyzes the results of integrated material studies of lithium ceramic $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ mole TiO_2 irradiated in reactor WWR-K during 5 350 hours under controlled conditions taking into account effects of tritium generated in the course of irradiation. The changes in density, microstructure, phase and chemical composition, strength and microhardness were studied; lithium burn-up level and tritium residual content were defined. The significant influence of radiation-thermal impacts on structure and properties of ceramic samples were observed. It was showed that irradiation resulted in lithium ceramics softening, at that this effect depended on irradiation temperature. It was discovered the radiation change of phase composition of lithium ceramic.

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время керамические материалы, содержащие литий, такие, как Li_2O , Li_2TiO_2 , Li_2ZrO_3 , Li_4SiO_4 и др., рассматриваются в качестве одних из наиболее перспективных бланкетных материалов для наработки трития в проектируемых термоядерных реакторах [1, 2]. Для некоторых из этих материалов собрано достаточно большое количество фактов их поведения в результате облучения, тогда как про другие информации явно недостаточно. Так, в работах [3, 4] проведена оценка воздействия нейтронного облучения на прочностные характеристики таблеток из Li_4SiO_4 , Li_2SiO_3 и LiAlO_2 , а также определена степень выгорания трития и количество выделившегося в процессе реакторного облучения и послерадиационной вакуумно-термической обработки трития. Показаны более высокая радиационная стойкость таблеток из алюмината лития и возможность использования ортосиликата лития в бланкете ТЯР без изменения эксплуатационных свойств до достижения 3%-ной степени выгорания. С учетом этого целью настоящей работы было получение новых экспериментальных данных по воздействию длительного нейтронного облучения и нарабатываемого при этом трития на изменение структуры и свойств литиевой керамики. В ходе выполнения работы решались следующие задачи: разделка ампул и безопасное хранение облученной керамики, измерение остаточного содержания трития и его выхода при отжигах, изучение влияния радиации и наработанного трития на структуру, физико-механические свойства и набухание литиевой керамики, изучение химического состава.

МАТЕРИАЛ, ОБРАЗЦЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Исследовали литиевую керамику состава $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 с 96%-ным обогащением по литию-6. Метатитанат лития был изготовлен в Японском агентстве по атомной энергии [5, 6] мокрым способом (wet process) с последующим обезвоживанием полученного материала. Порошкообразный Li_2CO_3 , обогащенный до 96% ат. ^6Li , синтезировали твердофазной реакцией между порошками карбоната лития (Li_2CO_3) и оксида титана (TiO_2):



Порошки смешивали и смесь превращали в пыль в шаровой мельнице в присутствии этилового спирта. После высушивания смесь порошков прогревали на воздухе при температуре 700—800 °С в течение 24 ч. После окончания реакции порошок снова перемалывали в этаноле и прокаливали на воздухе при 900 °С в течение 4 ч. Образовавшийся после реакции порошок Li_2TiO_3 измельчали струйной мельницей.

Методика включала стадию изготовления сфер геля, последующее капание, высушивание, прокаливание и спекание:

1. Изготовление сфер геля: приготавливали жидкую смесь, состоящую из порошка ${}^6\text{Li}_2\text{TiO}_3$, порошка TiO_2 , поливинилового спирта и воды. Смесь прокапывали в воздушной атмосфере через сопло в ацетон. В этом процессе жидкая смесь превращалась (благодаря поверхностному натяжению) в сферы, а сферы трансформировались в гель в ацетоне благодаря реакции обезвоживания. Сферы геля высушивали на воздухе.

2. Прокаливание сфер геля: высушенные сферы геля кальцинировали при 600 °С на воздухе для удаления поливинилового спирта. При этом получались гранулы с формой, близкой к сферической, — ${}^6\text{Li}_2\text{TiO}_3$ низкой плотности.

3. Спекание: имеющие малую плотность гранулы Li_2TiO_3 спекали при температуре 1000—1300 °С на воздухе с целью увеличения их плотности.

Схема процесса получения гранул $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 представлена на рис. 1.

Образцы в виде шариков (гранул) со средним размером 1 мм в количестве 2000 шт. были загружены в специально разработанные ампулы (6 шт.) из нержавеющей стали X18Н10Т, которые после вакуумирования заполняли гелием. Ампульное устройство для реакторного облучения показано на рис. 2.

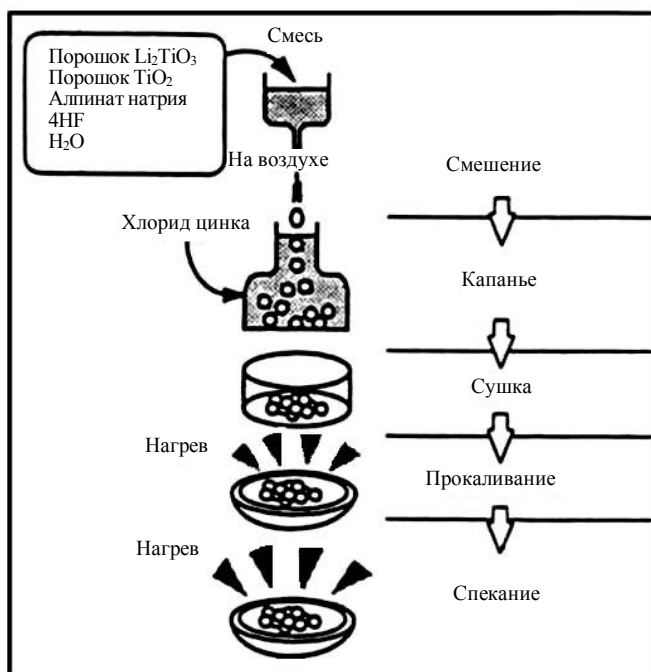


Рис. 1. Схема процесса получения гранул $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2

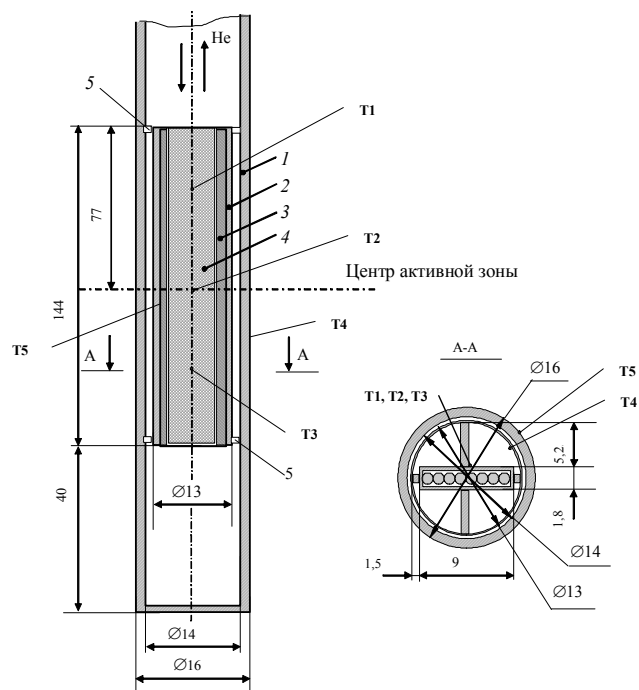


Рис. 2. Схема расположения образцов в ампульном устройстве: 1 — корпус ампульного устройства; 2 — тепловой экран; 3 — ребра теплопередачи; 4 — контейнер с образцами; 5 — керамические вставки; T_1 , T_2 , T_3 — термопары на контейнере с образцами; T_4 — термопара на корпусе ампулы; T_5 — термопара на тепловом экране

Облучение керамических образцов проводили в петлевом канале исследовательского реактора ВВР-К (Алматы, Республика Казахстан) в контролируемых условиях в течение 223 дней работы реактора на мощности 6 МВт. Невозмущенная плотность потока тепловых нейтронов в этих каналах на уровне центра активной зоны в начале испытаний равнялась $(1,2\text{—}1,4)10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$, в конце испытаний — $1,0 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$.

Степень выгорание лития в образцах за время реакторного эксперимента составила 20%. В процессе облучения керамики при температуре от 400 до 900 °С для некоторых ампул (тип А — активные) осуществляли контроль за выходом трития, нарабатываемого в процессе облучения за счет ядерной реакции нейтронов с литием-6.

Облучаемый образец представлял собой плотно упакованный слой (толщиной в одну гранулу) сферических гранул. Образец размещался в замкнутой, откаченной до давления порядка 10 торр ампуле, верхний конец которой, находящийся вне канала реактора, представлял собой палладиевый фильтр, обеспечивающий эффективное извлечение и очистку трития. Ампула с образцом, в свою очередь, размещалась в термостатирующей оболочке, омываемой гелием. Температуру образца изменяли по заданному режиму путём изменения парциального давления гелия в термостатирующей оболочке: чем выше было давление гелия в рубашке ампулы, тем ниже была температура образца, разогреваемого ядерной реакцией нейтронов с литием-6. Система подачи и откачки гелия в облучаемое ампульное устройство — гелиевая петля — позволяла плавно напускать и откачивать, а также поддерживать давление гелия в интервале от 10^{-1} до 10^5 Па в термостатирующей оболочке диффузионной ячейки. Диапазон температуры 20—900 °С. Температуру контролировали пятью термопарами, размещёнными в термостатирующей оболочке, на корпусе диффузионной ячейки и тепловом экране.

Аппаратура позволяла изучать процессы выделения трития из литийсодержащей керамики при радиационных и термических (в том числе циклических) воздействиях на образец. В ходе эксперимента автоматически и непрерывно измеряли температуру образца и поток трития, выделяющийся из титаната лития.

Методика реакторных экспериментов и измерения трития в процессе длительного облучения описаны ранее в работах [7—9].

Необлученные и облученные образцы, извлеченные из ампул в «горячей» камере, исследовали различными методами, которые включали в себя визуальный анализ формы, определение плотности, фазово-структурный анализ, механические испытания, изучение изменений химического состава керамики с помощью масс-спектрометра с индуктивно связанной плазмой (ICPMS) и измерение остаточного содержания трития. При этом старались, чтобы один и тот же образец исследовался различными методами. В промежутках между экспериментами все образцы хранились в вакуумированных колбах.

РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Контроль за изменением формы и размеров керамических образцов в результате реакторного облучения проводили с использованием цифрового измерителя толщины (Sony, точность 1 мкм) и инструментального микроскопа Karl Zeiss с увеличением 50 крат. При изучении гранул на основании данных по замерам для трех различных поперечных сечений установлено, что они не имеют строгой сферической формы (рис. 3).

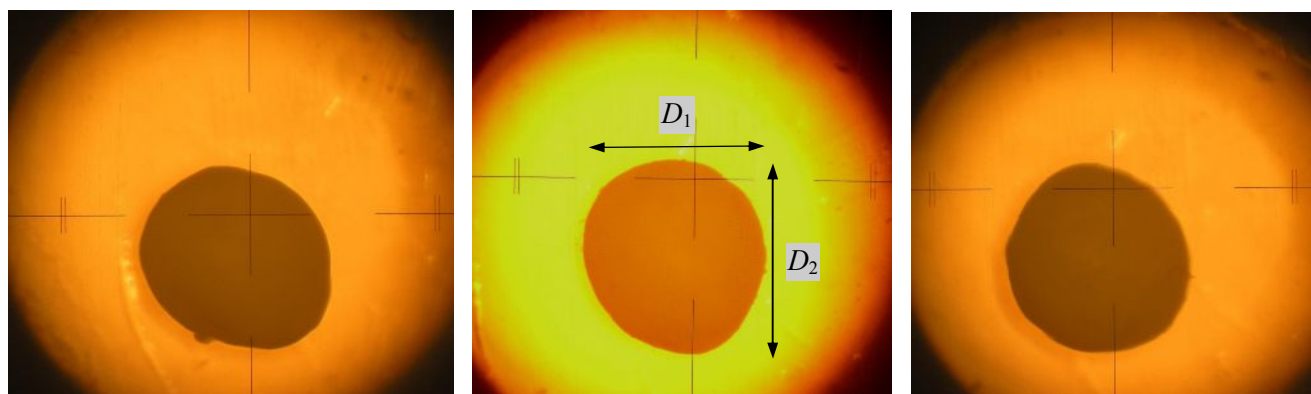


Рис. 3. Различные ракурсы поперечного сечения одной и той же керамической гранулы ($\times 20$)

Проведен поиск правильной плоской геометрической фигуры, которая наилучшим образом аппроксимировала бы площадь поперечного сечения гранулы. Такой фигурой оказался эллипс, и в экспериментах по контролю формы гранулы определяли средние значения полуосей эллипса — малой ($D_1/2$) и большой ($D_2/2$), а также отношение полуосей D_1/D_2 , так называемую сферичность. Также рассчитывали усреднен-

ную величину «диаметра» гранулы. В результате сравнительно небольшого (~40) числа измерений шариков (гранул), облученных в ампулах Р₁ и А₃, установлено, что отклонения величин малых и больших диаметров эллипсоида от 1 мм составляет 4—8%. Поскольку этот разброс значений слишком велик (и сравним с отклонениями в размерах для необлученных гранул), то для того чтобы делать выводы о распухании образцов в результате наработки трития по изменению формы и размеров образцов, необходимо строить статистические (т.е. с большой выборкой измерений) распределения по средним диаметрам отдельно для необлученных и облученных образцов. Пример таких кривых, построенных с использованием предварительных результатов исследования изменений размеров облученных гранул, приведен на рис. 4.

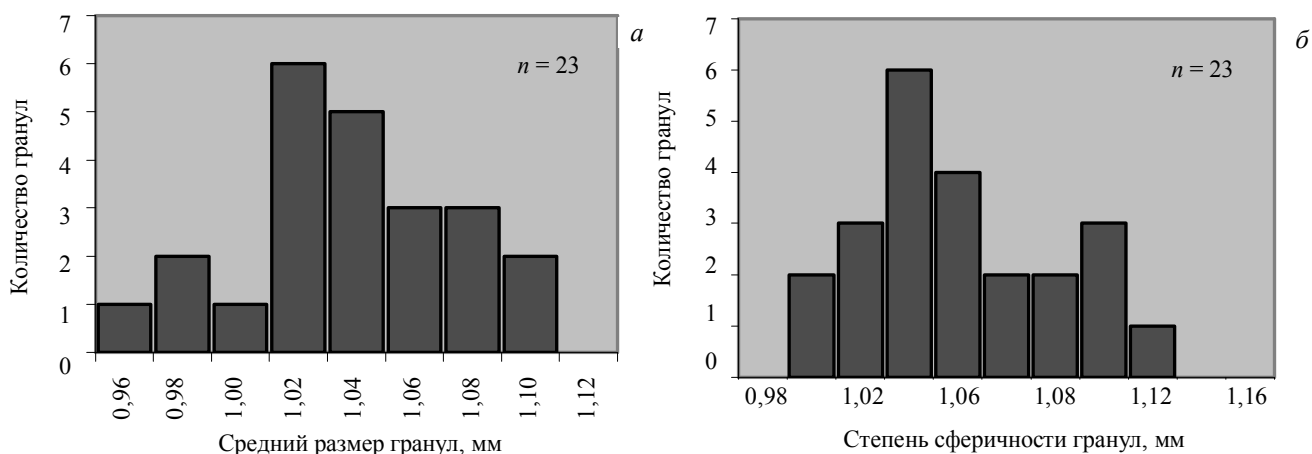


Рис. 4. Гистограмма распределения количества гранул по размерам (а) и по степени сферичности (б) для образцов, облученных при 650 °С (ампула А₃)

Анализ кривых распределения по размерам показал, что в результате облучения при 490 °С наиболее вероятный средний размер гранул несколько больше, чем в случае облучения при 657 °С. Возможно, это связано с тем, что при одинаковой скорости наработки трития его выход из образцов при 657 °С больше, чем при 490 °С, что и приводит к уменьшению размеров гранулы.

Таким образом, на основании полученных результатов можно заключить, что необходимы дополнительные данные о радиационном изменении формы и размеров гранул для повышения достоверности выводов о возможном распухании литиевой керамики под облучением.

Для определения плотности керамических гранул использовали пикнометрический метод (рабочая жидкость — силиконовое масло). Взвешивание проводили на электронных аналитических весах KERN-770. В ходе проведения экспериментов было установлено, что масса образцов при повторных взвешиваниях изменяется, что, вероятно, обусловлено взаимодействием керамики с влагой воздуха и маслом (спиртом). В этой связи после каждого эксперимента проводили операцию сушки образцов при температуре 150 °С в течение 15 мин, что свело к минимуму эффект различия масс. Уже предварительные результаты показали, что разброс значений плотности даже необлученных образцов слишком велик: от 1,37 до 2,14 г/см³. Большой разброс значений плотности керамики сохраняется и после реакторного облучения и составляет 40%.

Структуру керамики контролировали с помощью оптического микроскопа Neophot-2 с увеличением до 1200 крат. С этой целью, используя механическую шлифовку и полировку, изготавливали петрографические шлифы. Оказалось, что 80% исследуемой поверхности образца обладает хорошей отражательной способностью в оптическом микроскопе. В результате исследования нетравленных шлифов литиевых гранул обнаружено, что структура керамики неодинакова у различных образцов и неоднородна в пределах одного образца. Так, при большом (×1000) увеличении исследуемой поверхности гранулы можно видеть, что на светлом фоне (предположительно основа Li₂TiO₃) выделяются серые включения округлой формы со средним «диаметром» ~1 мкм (рис. 5, а),

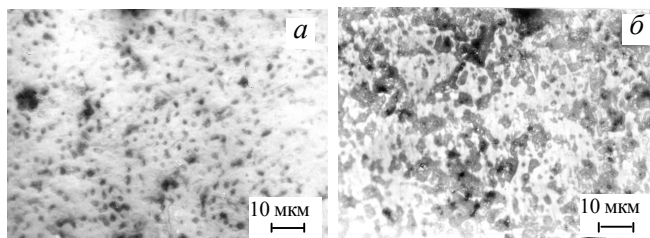


Рис. 5. Структура гранулы из литиевой керамики в различных областях шлифа: а — много светлой составляющей; б — много серой и темной составляющих

светло-серые включения произвольной конфигурации размером $\sim 5\text{--}10\text{ мкм}$ и практически черная структурная составляющая со средним размером $\sim 5\text{ мкм}$ (рис. 5, б). Если в одних образцах серые и черные включения занимают до $\sim 20\%$ поверхности исследуемого шлифа, как это показано на рис. 5, а, то в других — до $\sim 40\%$ площади литиевых гранул (см. рис. 5, б). Наряду с этим при исследовании поверхностей шлифов в керамике обнаружены поры со средним диаметром $\sim 1\text{ мкм}$, занимающие площадь $\sim 1\%$ шлифа.

Неожиданным явилось обнаружение в отдельных гранулах крупных полостей, расположенных практически в их центре (рис. 6). Обнаруженные полости имели средний размер $\sim 350\text{ мкм}$ и различную конфигурацию. В одних случаях это были сферические несплошности, тогда как в других — полости тоже округлые, но без определенной формы. Возможность наличия в гранулах подобных больших полостей, а также наличие в структуре включений, различающихся по конфигурации, цвету, взаимному расположению и количеству, во многом объясняет экспериментально наблюдавшееся различие в значениях плотности исследованных керамических образцов.

Например, на рис. 7 показана металлографическая структура образцов литиевой керамики C_3 и C_4 с различной плотностью: C_3 ($\rho = 1,34\text{ г/см}^3$) и C_4 ($\rho = 1,79\text{ г/см}^3$). Обе структуры представляют собой классический пример гетерогенного материала: основная фаза, примесные фазы, поры. Примесные фазы (структурные составляющие), в основном, две: темная фаза неправильной конфигурации; серые мелкие включения с четко очерченными границами.

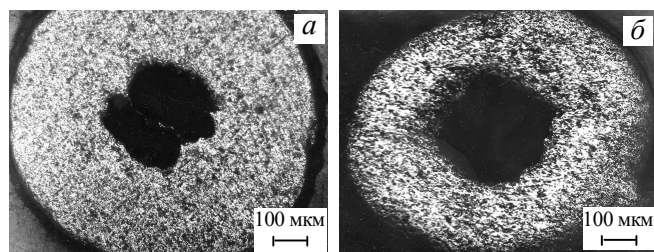


Рис. 6. Структура образцов Li_2TiO_3 (а) и конфигурация внутренних полостей (б)

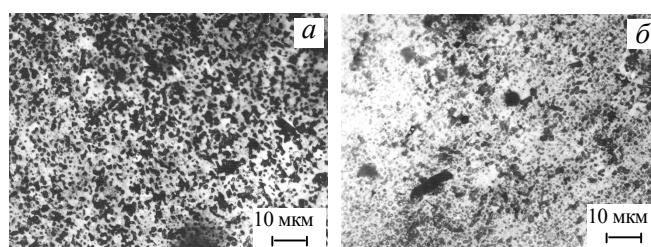


Рис. 7 Структура необлученных образцов литиевой керамики с различной плотностью: а — C_3 ($\rho = 1,34\text{ г/см}^3$); б — C_4 ($\rho = 1,79\text{ г/см}^3$)

Видно, что в процентном соотношении (по занимаемой площади) содержание выявленных фаз в образцах различно. Если образец C_3 имеет явно большее количество темной фазы ($\sim 50\%$), то в образце C_4 темной фазы $\sim 10\%$ и в нем присутствует большое количество ($\sim 30\%$) серых включений с четкими границами. Структура облученных образцов отличается от необлученных плотностью распределения темной и светлой составляющих. С целью идентификации серых и темных структурных составляющих в керамике Li_2TiO_3 проводились рентгеноструктурные исследования необлученных и облученных образцов.

Изменения фазового состава литиевой керамики контролировали с помощью дифрактометрического комплекса D8 ADVANCE (Bruker AXS GmbH) с использованием $\text{CuK}\alpha$ -излучения и позиционно-чувствительного проточного детектора PSD-50M. Для получения наиболее полной картины отражающих плоскостей, содержащихся в пробе фаз, проводилось вращение держателя образца с угловой скоростью 60 об./мин . При расшифровке фазового состава керамики использована лицензионная дополненная база PDF-2/ICDD 2001.

На основании анализа полученных дифрактограмм можно заключить следующее. Необлученные образцы однофазны, причем основной фазой является объемцентрированная моноклинная керамика Li_2TiO_3 . После облучения образцов в ампуле A_3 при температуре $657\text{ }^\circ\text{C}$ обнаружены сразу несколько фаз: наряду с Li_2TiO_3 зафиксирована основная фаза LiTi_2O_4 , а также следы гранецентрированной кубической фазы LiTiO_2 . По экспериментальным данным были рассчитаны параметры моноклинной решетки Li_2TiO_3 : $a_0 = 5,0810 \pm 0,004\text{ \AA}$, $b_0 = 8,8460 \pm 0,004\text{ \AA}$, $c_0 = 9,6790 \pm 0,001\text{ \AA}$, $\beta = 100,2^\circ$.

Установлено, что для некоторых гранул (например, E_1), также облученных в ампуле A_3 , фазовый состав характеризуется монофазой $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ с небольшим отклонением от стехиометрии. В то же время в

гранулах, облученных при температуре 490 °С, содержание фазы $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ относительно фаз Li_2TiO_3 и LiTiO_2 оказалось меньше, чем в случае облучения при 657 °С.

Наряду с рентгеноструктурным проведен также анализ элементного состава облученных керамических образцов. Установлено (табл. 1), что в спектре 1, снятом с темной поверхности, присутствуют такие элементы, как Cr, Ni и Fe, тогда как в спектре 2, соответствующем светлой (исходной) поверхности, Cr и Ni отсутствуют вообще, а железа в 3 раза меньше.

Т а б л и ц а 1. Элементный состав поверхности облученной керамической гранулы

Элемент, % вес.	O	Ti	Cr	Fe	Ni	Cu	Zn
Спектр 1	57,49	42,26	0,63	1,37	0,27	—	—
Спектр 2	79,12	49,07	—	0,47	—	0,69	0,53

Можно предположить, что указанные элементы, не свойственные исходному составу литиевой керамики, обнаружены в результате того, что облучение нейтронами проводили в ампуле из нержавеющей стали при повышенной (657 °С) температуре. Такое сочетание параметров облучения, по-видимому, способствовало выбиванию атомов указанных элементов с поверхности материала ампулы и их диффузии в соприкасающуюся керамическую гранулу.

Изменение химического состава керамики $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 и соотношения изотопов лития исследовали с помощью масс-спектрометра с индуктивно связанной плазмой ELAN 9000. Определяли массовое и изотопное отношение ${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}$. Для этого была разработана следующая процедура. Предварительно проводили измерения с использованием так называемой холостой пробы. Затем измеряли стандарт сравнения, который представляет собой раствор (100 ppb по Li), содержащий природное соотношение изотопов лития (${}^6\text{Li}$ — 7,59%, ${}^7\text{Li}$ — 92,41%). В заключение исследовали облученный керамический образец.

По окончании измерений с помощью программы метода изотопных отношений рассчитывали фактор коррекции на дискриминацию масс. По результатам, полученным для стандарта сравнения, программа рассчитывает также фактор коррекции изотопного отношения по формуле $RSF = S_{\text{изм}}/S_{\text{изв}}$, где $S_{\text{изм}}$ — измеренное изотопное отношение в стандарте за вычетом холостой пробы, $S_{\text{изв}}$ — известное изотопное отношение в стандарте.

Результаты анализа литиевой керамики и расчетные данные по выгоранию изотопа ${}^6\text{Li}$ представлены в табл. 2. Степень выгорания изотопа ${}^6\text{Li}$ рассчитывалась по формуле

$$\text{степень выгорания} = (({}^6\text{Li}/{}^7\text{Li})_{\text{исх}} - ({}^6\text{Li}/{}^7\text{Li})_{\text{п. обл.}}) / ({}^6\text{Li}/{}^7\text{Li})_{\text{исх}} \cdot 100\%, \quad (1)$$

где $({}^6\text{Li}/{}^7\text{Li})_{\text{исх}}$ — изотопное отношение до облучения литиевой керамики; $({}^6\text{Li}/{}^7\text{Li})_{\text{п. обл.}}$ — изотопное отношение после облучения литиевой керамики.

Степень выгорания, определенная таким образом, составила 20—22%, что хорошо совпадает с расчетами.

Т а б л и ц а 2. Содержание изотопов лития в керамике $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 до и после облучения

Определяемый параметр	До облучения	После облучения	
		$T_{\text{обл}} = 490^\circ\text{C}$	$T_{\text{обл}} = 657^\circ\text{C}$
${}^6\text{Li}$ (масс.%)	95,4	94,3	94,0
${}^7\text{Li}$ (масс.%)	4,6	5,7	6,0
${}^6\text{Li}/{}^7\text{Li}\%$	20,7	16,5	15,6
Степень выгорания ${}^6\text{Li}$ (масс.%)	—	19,6	24,5

Из табл. 2 видно, что керамические образцы, облучавшиеся при меньшей (490 °С) температуре, характеризуются существенно меньшей степенью выгорания изотопа ${}^6\text{Li}$.

С целью изучения влияния реакторного облучения и наработанного трития на прочностные характеристики керамики необлученные и облученные образцы подвергались механическим испытаниям «на сжатие» при температуре 293 К и скорости деформации 0,5 мм/мин. Для этого было разработано специальное устройство (микропуансон), в котором в качестве нагружающего узла выбрана универсальная испытательная машина «Инстрон-1195». Облученные керамические образцы перед сжатием помещали в специальные герметичные полиэтиленовые контейнеры для предохранения загрязнения атмосферы остальным тритием. В процессе деформирования проводилась фотосъемка образца (рис. 8).

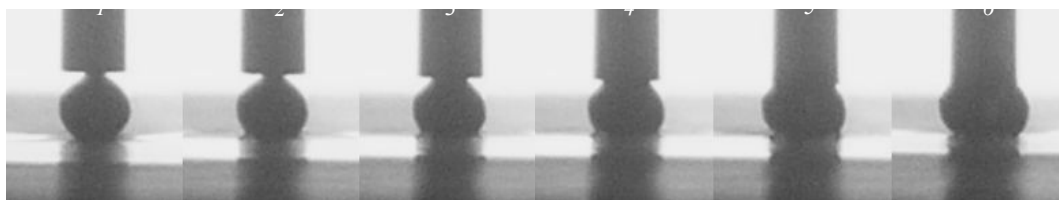


Рис. 8. Этапы сжатия гранул в процессе деформации (цифры соответствуют моментам, указанным на диаграмме сжатия (рис. 9, а))

На рис. 9, а приведены инженерные диаграммы, полученные при деформации необлученных образцов (для наглядности кривые смещены по оси X). На рис. 9 видно, что общий вид кривых сжатия необлученных керамических гранул B_2 и D_1 характеризуется отсутствием пластической деформации. Сразу после области упругой деформации по достижении предела прочности σ_d наблюдается резкое падение нагрузки P , повторяющееся на всем протяжении сжатия образца. По всей видимости, это обусловлено образованием в процессе деформации магистральных трещин с последующим разрушением гранулы шарика. В отличие от необлученных диаграмма сжатия для облученных образцов E_1 и E_2 (рис. 9, б) содержит область предварительного сжатия (до упругого участка), относящуюся к деформации защитного контейнера. Найденные из диаграмм сжатия значения механических характеристик литевой керамики приведены в табл. 3 и, как оказалось, хорошо согласуются с результатами, приведенными в [1] для необлученных образцов. Полученные данные позволяют заключить, что в результате облучения при $T = 657^\circ\text{C}$ литевая керамика становится менее прочной. В то же время эффект радиационного разупрочнения проявляется в большей степени для образцов, облученных при 490°C (см. табл. 3).

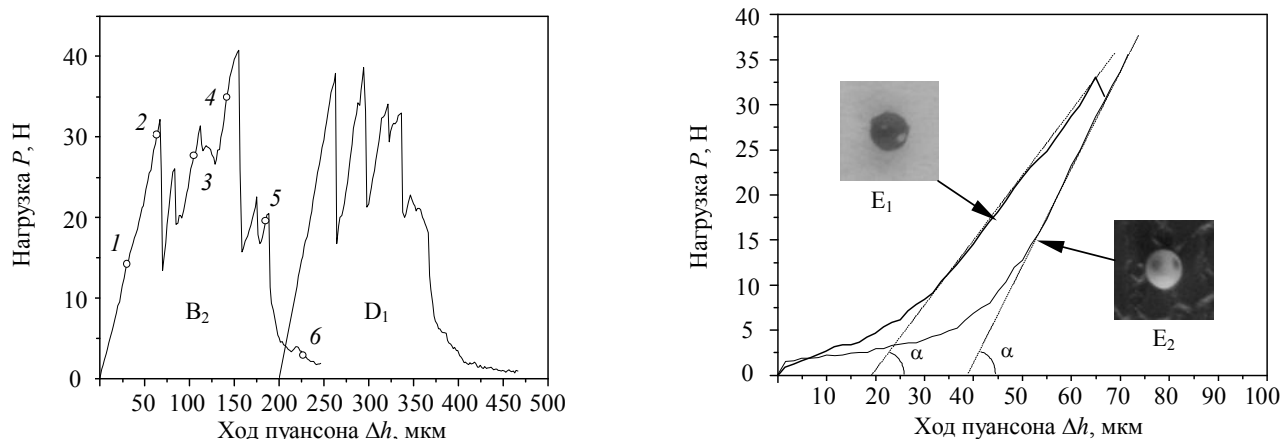


Рис. 9. Диаграммы сжатия образцов в виде гранул: а — необлученные; б — облученные нейтронами

Т а б л и ц а 3. Характеристики прочности керамики $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 до и после реакторного облучения

Гранулы	Состояние	D_1 , мм	D_2 , мм	$F_{\text{ср}}$, мм ²	P_d , Н	σ_d , МПа
D_1	Необлученные	0,97	1,01	0,77	37,9	49,0
B_2	Необлученные	0,97	1,05	0,80	32,3	40,0
E_1 темн.	Облученные	1,07	1,00	0,84	32,5	38,7
E_2 светл.	(A_3 , $T = 657^\circ\text{C}$)	1,05	0,96	0,79	35,0	44,3
M_3 светл.	Облученные,	1,09	1,07	0,92	43,0	46,7
M_8 темн.	(P_1 , $T_{\text{обл}} = 490^\circ\text{C}$)	1,05	1,06	0,87	15,8	18,2

В связи с неоднородностью структуры представляло интерес определить прочность различных структурных составляющих керамики (белой, серой и черной (см. рис. 5)). С этой целью использовали результаты измерений микротвердости, которые проводили на приборе ПМТ-3 с алмазной пирамидкой, характеризующейся углом 136° между гранями. Нагрузка на индентор составляла 50 г. Результаты предварительных исследований свидетельствуют о том, что микротвердость серой структурной составляющей меньше, чем белой. Так, измерения микротвердости двух образцов E_1 и E_2 , облученных при 657°C в ампуле A_3 , показали, что светлый образец E_2 (в его структуре превалирует белая составляющая) характеризуется микротвердостью $130\text{—}150\text{ кг/мм}^2$. В то же время более темный образец E_1 (в его структуре превалирует темная фаза) характеризуется микротвердостью $85\text{—}95\text{ кг/мм}^2$. (Отметим, что величина напряжения разрушения σ_d , найденная для светлого образца, также оказалась больше ($44,3\text{ МПа}$), чем в случае темного образца ($38,7\text{ МПа}$).)

Что касается необлученных образцов, то, например, для гранулы D₁ показано, что микротвердость темной составляющей структуры ~133 кг/мм², тогда как светлой ~178 кг/мм².

Таким образом, результаты измерений микротвердости подтверждают данные механических испытаний «на сжатие», что реакторное облучение приводит к разупрочнению керамики. Одной из возможных причин снижения прочности является наличие в керамике остаточного гелия и трития.

Измерение остаточного содержания трития проводилось с использованием метода жидкостной сцинтилляции на бета-спектрометре TRICARB-3100TR.

Керамический образец весом около 1,5 мг растворялся в 0,3 мл концентрированной серной кислоты в автоклаве емкостью 40 мл в течение 2 ч при температуре 150 °С. Разложенная проба (раствор) нейтрализовывалась карбонатом натрия до pH 9, после чего объем пробы доводился до 50 мл. Полученный щелочной раствор перегонялся, при этом первая фракция объемом 15 мл отбрасывалась, а вторая фракция объемом 20 мл собиралась для дальнейшего анализа активности трития. Аналогичным образом, независимо друг от друга, были растворены три образца облученной литиевой керамики. Чистоту полученного раствора объемом 20 мл до и после перегонки определяли с помощью гамма-спектрометра. Величины активности гамма-излучающих радионуклидов до и после перегонки, а также их соотношение в образце приведены в табл. 4.

Т а б л и ц а 4. Радионуклидный состав растворов литиевой керамики Li₂TiO₃ + 5% мол. TiO₂, полученный методом гамма-спектрометрических измерений

Образец	¹⁹² Ir		⁵⁸ Co		⁴⁶ Sc		⁶⁰ Co		¹⁸² Ta		⁵⁴ Mn	
	Бк/мл	%	Бк/мл	%	Бк/мл	%	Бк/мл	%	Бк/мл	%	Бк/мл	%
Облученный	100 ± 9	2,2	42,8 ± 5,0	0,9	3400 ± 300	75	720 ± 80	16	140 ± 12	3,1	113 ± 10	2,5
Очищенный по радионуклидам	1,9 ± 0,3	3,2	0,6 ± 0,2	1,0	45,5 ± 5,0	76	8,3 ± 0,7	14	2,0 ± 0,5	3,4	1,3 ± 0,3	2,2
“ “	0,2 ± 0,1	6,1	< 0,1	3,0	2,1 ± 0,5	64	0,7 ± 0,3	21	< 0,1	3,0	< 0,1	3,0
“ “	0,8 ± 0,2	2,4	0,4 ± 0,2	1,2	17,8 ± 2,1	53	13,9 ± 1,2	42	0,3 ± 0,1	0,9	< 0,1	0,3

Правильность используемой схемы анализа проверяли методом добавок с использованием необлученной керамики и стандартного раствора трития SRM 492F. Очищенный раствор образца использовали для измерения активности трития и определения соотношения изотопов лития. В результате проведенных исследований оказалось, что активность образцов по тритию, нарабатанному в литиевой керамике при $T_{\text{обл}} = 657$ °С, найденная как среднее из трех измерений, составляет $1,7 \cdot 10^{11}$ Бк/кг. В то же время активность образцов по тритию в сегменте гранулы из Li₂TiO₃ + 5% мол. TiO₂, облученного при $T = 490$ °С, оказалась равной $6,6 \cdot 10^{11}$ Бк/кг, т.е. больше.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты предварительных комплексных материаловедческих исследований литиевой керамики Li₂TiO₃ + 5% мол. TiO₂ до и после длительного (5350 ч) облучения в реакторе ВВР-К при температуре 490 и 650 °С обнаружили значительное влияние радиационно-термического воздействия на структуру и свойства керамических образцов.

Показано, что после реакторного облучения гранулы становятся темными, соответственно в них возрастает количество темной составляющей структуры, обладающей меньшей плотностью и микротвердостью. На основании анализа элементного состава керамики сделан вывод, что наблюдаемые в облученной керамике темные вкрапления — это окись лития, тогда как светлая составляющая соответствует окиси титана.

Установлено, что в результате облучения литиевая керамика разупрочняется, причем этот эффект больше для температуры облучения 490 °С, чем для 650 °С. Величина предельно допустимой нагрузки (по достижении которой гранула разупрочняется) невелика и составляет ~40 Н. При этом керамика, в которой превалирует светлая составляющая, прочнее, чем керамика с темной структурой. Наиболее вероятной причиной этого являются газообразные продукты деления лития — гелий и остаточный тритий ³H, количество последнего больше в образцах, облученных при 490 °С, чем при 657 °С. Об этом свидетельствуют найденные экспериментально значения отношений изотопов лития, которые оказались равными 19,6 и 24,5 для температур облучения 490 и 657 °С соответственно.

Измерения содержания трития в исследуемых образцах показали, что его содержание (активность, равная $(6,6 \pm 0,6)10^{11}$ Бк/кг) больше в керамике, облученной в ампуле Р₁ при температуре 490 °С, чем в образцах, облученных в ампуле А₃ при температуре 657 °С $((1,7 \pm 0,3)10^{11}$ Бк/кг). Эти результаты согласуются с данными по обмеру образцов, из которых следует, что средний диаметр гранулы в результате облучения несколько увеличивается, причем больше при $T_{\text{обл}} = 490$ °С, чем при $T_{\text{обл}} = 657$ °С, когда, по-видимому, часть трития, а возможно и гелия, уходит из керамики во время высокотемпературного облучения.

Рентгеноструктурный анализ показал радиационное изменение фазового состава литиевой керамики $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5\%$ мол. TiO_2 с образованием новых фаз — LiTi_2O_4 , LiTiO_2 и $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$.

Авторы выражают огромную признательность В.К. Капышеву за сделанные замечания и исправления, компании JAEA (Япония) и МНТЦ за финансовую поддержку данной работы.



Ирина Лашкаровна Тажибаева, доктор ф.-м.н., профессор, зам. директора, заслуженный работник атомной отрасли Республики Казахстан



Хироши Кавамура, директор Центра нейтронного облучения и исследовательских реакторов Агентства по атомной энергии Японии



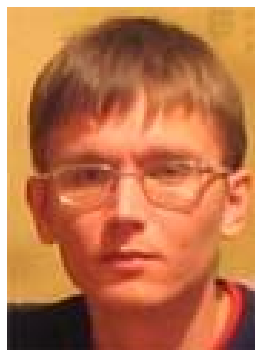
Ергазы Асиевич Кенжин, кандидат ф.-м.н., директор, заслуженный работник атомной отрасли Республики Казахстан



Олег Прокофьевич Максимкин, зав. лабораторией, доктор ф.-м.н., заслуженный работник атомной отрасли Республики Казахстан



Кунихито Цучия, сотрудник группы облучения и анализа бланкета Агентства по атомной энергии Японии



Тимур Валиханович Кульсартов, старший н.с.



Надежда Семеновна Сильнягина, младший н.с.



Айжан Амангалиевна Куйкабаева, аспирантка



Кира Викторовна Цай, старший н.с., кандидат ф.-м.н.



Татьяна Анатольевна Доронина, инженер



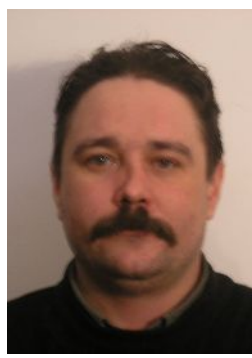
Евгений Васильевич Чихрай, ведущий н.с., кандидат т.н.



Владимир Павлович Шестаков, кандидат ф.-м.н., заведующий лабораторией



Людмила Григорьевна Турубарова, н.с., заслуженный работник атомной отрасли РК



Владимир Владимирович Каширский, начальник группы



Дмитрий Анатольевич Желтов, научный сотрудник

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Tsuchiya K., Kawamura H.** Data Base for Tritium Solid Breeding Materials (Li_2O , Li_2TiO_3 , Li_2ZrO_3 and Li_4SiO_4) of Fusion Reactor Blankets. /http://www.hrc.toyama-u.ac.jp/f-blanket-database/f-index.html.
2. **Tsuchia K., Nakamichi M., Kikukawa A., Nagao Y., Enoeda M., Osaki T., Loki K., Kawamura H.** In-pile test of Li_2TiO_3 pebble bed with neutron pulse operation. — J. Nucl. Mater., 2002, vol. 307—311, p. 817—822.
3. **Капышев В.К.** Воздействие нейтронного облучения на прочностные свойства керамических литийсодержащих таблеток, предназначенных для бланкетов термоядерных реакторов. — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2001, вып. 1, с. 51—57.
4. **Karychev V., Tebus V., Frolov V.** Influence of neutron irradiation on the strength characteristics of lithium ceramic pellets for fusion reactor blankets. — J. Nucl. Mater., 2002, vol. 307—311, p. 823—826.
5. **Tsuchiya K., Kawamura H., Fuchinoue K., Sawada H., Watarumi K.** Fabrication development and preliminary characterization of Li_2TiO_3 pebbles by wet process. — J. Nucl. Mater., 1998, vol. 258—263, p. 1895—1990.
6. **Tsuchiya K., Kawamura H.** Fabrication and characterization of ^6Li -enriched Li_2TiO_3 pebbles for a high Li-burnup irradiation test. — JAEA-Technology, 2006, № 047, p. 1—18.
7. **Shestakov V., Tazhibayeva I., Kawamura H., Kenzhin Y., Kulsartov T., Chikhray Y., Kolbaenkov A., Arinkin F., Gizatulin Sh., Chakrov P.** In-pile assemblies for investigation of tritium release from Li_2TiO_3 lithium ceramic. — Fusion Science and Technology, 2005, vol. 47, p. 1084—1088.
8. **Аринкин Ф.М., Гизатулин Ш.Г., Чакров П.В., Жотабаев Ж.Р., Тажибаева И.Л. и др.** Ресурсные испытания литиевой керамики на реакторе ВВР-К. — В сб.: Ядерная и радиационная физика. Т. II. Материалы 5-й Международной конференции «Радиационная физика твердого тела и проблемы материаловедения», 26—29 сентября 2005. — Алматы: ИЯФ НЯЦ РК, 2006, с. 493—500.
9. **Тажибаева И.Л., Шестаков В.П., Кенжин Е.А., Чихрай Е.В., Кульсартов Т.В., Чакров П.В., Гизатулин Ш.Х., Бекмухамбетов Е.С., Куйкабаева А., Kawamura H., Tsuchiya K.** Использование реактора ВВР-К для длительных радиационных испытаний литиевой керамики Li_2TiO_3 для бланкета ТЯР. — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2007, вып. 2, с. 3—10.

Статья поступила в редакцию 27 декабря 2007 г.

Вопросы атомной науки и техники.

Сер. Термоядерный синтез, 2008, вып. 1, с. 3—12.

УДК 621.039.616

СИНТЕЗ И МОДЕЛИРОВАНИЕ СИСТЕМЫ МАГНИТНОГО УПРАВЛЕНИЯ ПЛАЗМОЙ В ТОКАМАКЕ КТМ

В.Н. Докука, Р.Р. Хайрутдинов (ГНЦ РФ ТРИНИТИ), А.А. Кавин (НИИЭФА им. Д.В. Ефремова)

Излагаются основные принципы построения двухконтурной системы магнитного управления положением, током и формой плазмы в токамаке КТМ. Используя предварительно выполненные статические расчеты плазменных конфигураций в соответствующие моменты времени, формируются программные значения параметров, требуемых для магнитного управления плазмой. Цель создания системы магнитного управления состоит в том, что программная динамика тока и формы плазмы, а также токов в полоидальных обмотках токамака должна быть отработана системой управления с обратной связью. Приводятся результаты моделирования омического сценария разряда и разряда с дополнительным нагревом с использованием программно-вычислительного комплекса ДИНА в системе MATLAB-Simulink.

SYNTHESIS AND MODELING OF PLASMA MAGNETIC CONTROL SYSTEM IN KTM TOKAMAK. V.N. DOKUKA, R.R. KHAYRUTDINOV, A.A. KAVIN. The paper is devoted to designing of two-loop plasma position, current and shape control system in KTM tokamak. Using preliminary fulfilled equilibrium calculations (snapshots) corresponding to some moments of discharge scenario, the programmed scenarios for poloidal field currents and for a set of parameters needed for modeling of plasma magnetic control were created. The main goal of the development of magnetic control system is to provide evolution of plasma current and shape according to their programmed scenarios on all duration of plasma discharge. The obtained results of simulations for ohmic and auxiliary heating scenarios are presented. Modeling is carried out by using DINA code in the frame of MATLAB-Simulink environment.