

УДК 66.074.7.099.2:546.11

РАЗДЕЛЕНИЕ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА НА Pd-СОДЕРЖАЩЕМ СОРБЕНТЕ

А.В. Бучирин, А.Н. Голубков (РФЯЦ — Всероссийский НИИ экспериментальной физики, г. Саров, Россия)

В работе кратко рассмотрен принцип работы лабораторного стенда, предназначенного для разделения изотопов водорода (ИВ) методом замещающей газовой хроматографии. Сорбент, используемый в работе стенда, был изготовлен на основе палладиевой черни (75% мас.) с добавлением порошка алюминия. Представлены зависимости чистоты извлекаемого дейтерия от степени извлечения его из исходной смеси как при различных температурах разделительной колонны, так и различных начальных концентрациях дейтерия в смеси.

Ключевые слова: протий, дейтерий, разделение изотопов водорода, палладий, алюминий, замещающая хроматография.

HYDROGEN ISOTOPE SEPARATION ON Pd CONTENT SORBENT. A.V. BUCHIRIN, A.N. GOLUBKOV. Operation principle of laboratory bench being used for hydrogen isotope separation by displacement chromatography has been briefly considered in this study. Sorbent being used in laboratory bench operation was based on palladium black (75% wt.) with aluminum powder addition. Dependences of withdrawn deuterium purity on extraction ratio from initial content mixture both by different separation column temperatures and by different initial deuterium mixture concentration have been presented.

Key words: protium, deuterium, hydrogen isotope separation, palladium, aluminum, displacement chromatography.

ВВЕДЕНИЕ

Для регенерации газа в рабочем цикле термоядерного реактора могут использоваться различные методы разделения ИВ. Одним из таких методов является метод хроматографического разделения на твёрдом сорбенте. На основе этого метода в Абингтоне (Англия) была построена установка разделения ИВ для регенерации газовой смеси исследовательского реактора JET [1]. В этой установке использовался сорбент на основе палладия (18% мас.), осаждённого на пористом α -Al₂O₃. Этот сорбент имеет достаточно низкие газовую ёмкость и теплопроводность, что снижает производительность установки.

В настоящей работе представлены характеристики сорбента с содержанием палладия 75% мас. в смеси с порошком металлического алюминия [2]. Ёмкость такого сорбента на единицу объёма в ~4 раза больше, чем сорбента на основе α -Al₂O₃.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Работы по исследованию характеристик сорбента проводились на экспериментальном стенде, принципиальная схема которого приведена на рис. 1.

Стенд состоит из разделительной колонны, заполненной исследуемым сорбентом, ёмкостей для заполнения гелием и исходной газовой смесью, термодесорбционных источников протия и дейтерия, мембранного и форвакуумного насосов. Прибором, служащим для определения моментов начала и окончания выхода каждого из компонентов, служит датчик теплопроводности — катарометр (К), который состоит из нитей накаливания, объединенных в мост Уитстона. Нити нагреваются постоянным током и обдуваются выходящим из колонны газом, в котором они приобретают определённое сопротивление. При изменении состава газа меняется сопротивление нитей, что фиксируется регистрирующей аппаратурой в виде изменения разности потенциалов моста.

Отработка проводилась на смеси протия и дейтерия.

Работа установки осуществляется следующим образом. Предварительно отвакуумированная с помощью форвакуумного насоса колонна заполняется гелием. Гелий позволяет исключить градиент дав-

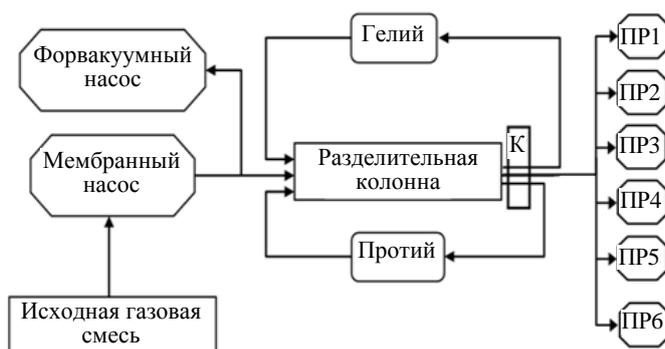


Рис. 1. Принципиальная схема экспериментального стенда для изучения разделения изотопов водорода на палладиевом сорбенте

ления внутри колонны и, как следствие этого, продольное перемешивание, приводящее к ухудшению степени разделения.

После этого колонна заполняется смесью изотопов водорода. Далее из термодесорбционного источника в колонну подается протий, который, проходя участок с ранее сорбированной газовой смесью, вступает с ней в реакцию изотопного обмена. В результате этой реакции протий из газовой фазы замещает дейтерий (из сорбента), который концентрируется в газовой фазе. По мере поступления протия в колонну разделения и прохождения через неё газа формируются области практически чистых компонентов. Первым из колонны вытесняется гелий, который собирается в предназначенную для него ёмкость. После гелия выходит практически чистый дейтерий, который последовательно собирается в несколько пробирок (см. рис. 1, ПР1—ПР6), в каждом из которых с помощью метода газовой хроматографии определяется изотопный состав газа.

На рис. 2 представлена типичная кривая изменения сигнала катарометра при прохождении через него последовательно гелия, дейтерия и протия.

По окончании процесса разделения колонна оказывается заполненной протием, который необходимо удалить перед началом нового цикла разделения. Для удаления протия разделительная колонна нагревается до 200 °С, а выделяющийся газ поглощается термодесорбционным источником.

Целью работы было получение зависимостей чистоты извлекаемого дейтерия и возможности его наиболее полного извлечения из смеси от следующих факторов:

- температурный режим работы разделительной колонны;
- начальная концентрация дейтерия в смеси.

Найдено, что при увеличении температуры разделительной колонны степень извлечения тяжелого изотопа увеличивается, а его максимальная концентрация в выделяемом газе снижается. Зависимость концентрации выделяемого дейтерия от степени его извлечения при различных температурах разделительной колонны представлена на рис. 3.

На рис. 3 видно, что при изменении температуры разделительной колонны от 286 до 343 К для смеси с исходным содержанием дейтерия 9% концентрация извлекаемого дейтерия снижается с 98 до 95%, что, по-видимому, связано с уменьшением коэффициента разделения [3], а степень извлечения растет с 90 до 97%, что связано с возрастанием скоростей межфазного изотопного обмена с ростом температуры.

Найдено, что эффективность работы изученного сорбента снижается при уменьшении концентрации дейтерия в смеси. В качестве примера на рис. 4 приведены зависимости концентрации выделяемого дейтерия от степени его извлечения для смесей с различным исходным содержанием дейтерия.

На рис. 4 видно, что при снижении концентрации дейтерия в исходной смеси менее ~2% его извлечение с

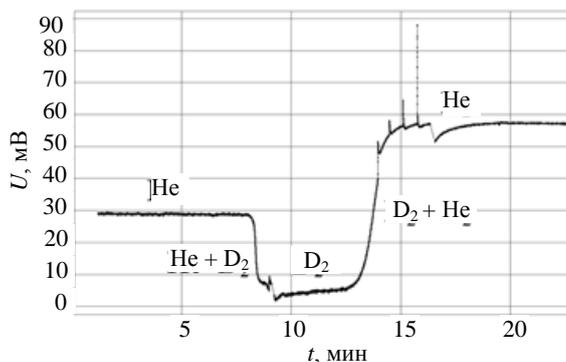


Рис. 2. Зависимость изменения разности потенциалов моста Уитстона от времени при последовательном прохождении через катарометр гелия, дейтерия и протия

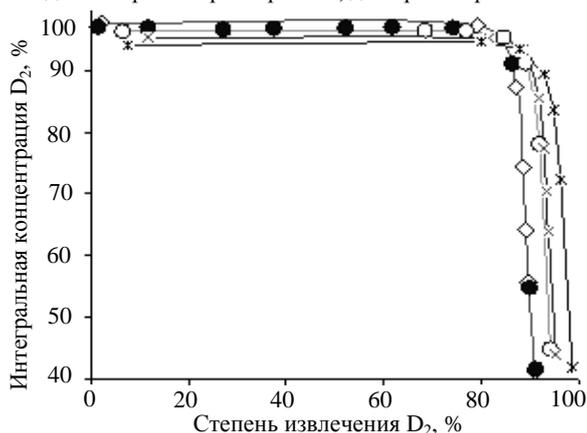


Рис. 3. Зависимость концентрации извлекаемого D₂ от степени его извлечения при различных температурах разделительной колонны: 286 (◇), 294 (●), 313 (○), 330(×), 343 К(×). Начальная концентрация D₂ 9%

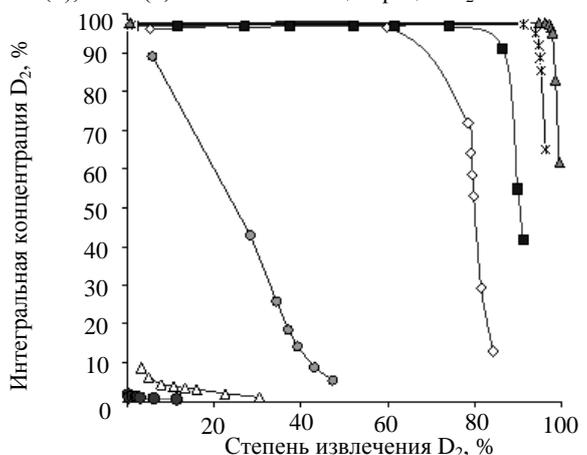


Рис. 4. Зависимость концентрации извлекаемого D₂ от степени его извлечения для смесей с различным исходным содержанием дейтерия: 0,8% (●); 1,4% (▲); 2,1% (◐); 6,7% (◊); 9,26% (■); 20% (×); 58,4% (▲)

высокой концентрацией становится затруднительным. Ранее снижение эффективности палладиевого сорбента на основе Al_2O_3 при снижении концентрации дейтерия в газовой смеси менее 2% было отмечено в работе [1]. Учитывая, что максимальная концентрация выделенного в данной работе дейтерия составила ~98%, можно предположить, что эффективная работа исследованного сорбента на основе палладия возможна в концентрационных пределах одного из компонентов разделяемой смеси D_2+H_2 не менее ~2%. Это, видимо, связано со уменьшением скорости межфазного изотопного обмена при снижении концентрации одного из компонентов ниже указанной величины.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результатом проделанной работы явилось получение экспериментальных зависимостей чистоты извлекаемого дейтерия от степени его извлечения из исходной смеси как при различных температурах разделительной колонны, так и различных начальных концентрациях дейтерия в смеси.

Найдено, что при увеличении температуры происходит снижение максимальной концентрации извлекаемого дейтерия, при этом степень извлечения возрастает. При увеличении начальной концентрации дейтерия в смеси происходит увеличение и концентрации, и степени извлечения дейтерия. При этом наиболее резкая зависимость заметна в интервале начальной концентрации дейтерия от 1 до 6% . Максимальная концентрация извлекаемого дейтерия, полученная в работе, составила ~98%.



Алексей Вячеславович Бучин, н.с.
e-mail:welr@mail.ru



Александр Николаевич Голубков, ведущий н.с., к.ф.-м.н.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Lässer R., Jones G., Hemmerich J.L. et al.** The preparative gas chromatographic system for the JET active gas handling system inactive commissioning. — *Fus. Technol.*, 1995, vol. 28, p. 681—686.
2. **Андреев Б.М., Перевезенцев А.Н., Писарев Ю.Н.** Гранулированные сорбенты водорода на основе гидридообразующих металлов. — *Неорг. мат.*, 1987, т. 23, № 2, с. 233—237.
3. **Андреев Б.М., Боресков Г.К., Чжэн Чань-Цюнь и др.** Кинетика изотопного обмена между газообразным водородом и водородом, растворённым в палладии. — *Кинетика и катализ*, 1966, т. 7, № 3, с. 470—474.

Статья поступила в редакцию 20 апреля 2009 г.
Вопросы атомной науки и техники.
Сер. Термоядерный синтез, 2009, вып. 3, с. 61—63.