

УДК.533.924

## ЗАХВАТ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА В ГРАФИТЕ МПГ-8

*Н.П. Бобырь, А.В. Спицын (ИЯС РНЦ «Курчатовский институт», г. Москва, Россия)*

В работе описаны исследования взаимодействия молекулярного дейтерия с графитом МПГ-8 при различной температуре графита, проведенные на установке AtlaN, представляющей собой высоковакуумную камеру с автоматизированной системой напуска газа, измерения давления и состава газа. Разработана методика, позволяющая проводить исследования взаимодействия газа с углеродными материалами при температуре от 290 до 600 К. Проведены исследования сорбции и десорбции молекулярного дейтерия графитом МПГ-8 при секундном времени насыщения. Определена энергия активации процесса, приводящего к задержке дейтерия в графите,  $E_a = 6,5$  кДж/моль.

**Ключевые слова:** графит, дейтерий, топливный цикл.

HYDROGEN ISOTOPE INVENTORY BY FINE-GRAIN GRAPHITE MPG-8. N.P. Bobyr, A.V. Spitsyn. In this work the laboratory facility was used for investigation the influence of MPG-8 graphite on fuel recycling at different graphite temperature. The facility AtlaN is high-vacuum the chamber with automated systems of gas puffing, pressure measurement, sample heating and QMS. Investigation of molecular deuterium interaction (sorption and desorption) with fine-grain graphite MPG-8 at temperature of graphite from 290 to 600 K were carried out for short gas-graphite interaction time. The desorption activation energy was  $E_a = 6.5$  kJ/mol.

**Key words:** graphite, deuterium, fuel cycle.

### ВВЕДЕНИЕ

Важными проблемами в термоядерных исследованиях являются взаимодействие плазмы с первой стенкой вакуумной камеры термоядерной установки и накопление трития в материалах, обращённых к плазме. В первую очередь исследователей интересуют углеродосодержащие материалы: графиты и CFC (Carbon Fiber Composite). Особое внимание, уделяемое материалам на основе углерода, связано прежде всего с их способностью образовывать химические соединения с изотопами водорода. Это приводит к значительному неконтролируемому транспорту углерода внутри вакуумной камеры термоядерного реактора (ТЯР), образованию углеводородных плёнок и пыли в разных частях реактора и накоплению изотопов водорода в этих материалах [1].

В реакторе ИТЭР для защиты первой стенки вакуумной камеры от воздействия термоядерной плазмы планируется использовать пластины из бериллия, вольфрама и углерода [2]. Выбранные материалы должны накапливать в себе как можно меньше изотопов водорода, так как в качестве топлива планируется применение радиоактивного изотопа водорода — трития.

Влияние графита и углеродных структур на кругооборот изотопов водорода в процессе плазменного разряда, до и после разряда, а также на стадии кондиционирования камеры является одним из ключевых вопросов, который возникает в связи с использованием материалов на основе углерода в качестве защиты первой стенки ТЯР. В обзоре [3] констатируется важная роль образования углеродных плёнок в процессе необратимого накопления трития в установке при её эксплуатации. Возврат трития в кругооборот термоядерного топлива превратился в настоящее время в ключевую, практически до сих пор нерешённую проблему. Образование и накопление углеродной пыли тоже вносит свои «неприятные» моменты в безопасную эксплуатацию термоядерного реактора. Последние десятилетия широко исследуется накопление изотопов водорода углеродными материалами при плазменном и ионном облучении, однако захват топлива из газовой фазы и его кратковременное удержание (на десятки секунд) в материале на лабораторных стендах исследовались мало. В то же время этот процесс должен оказывать существенное влияние на топливный рециклинг в процессе разряда в ТЯР.

Важной характеристикой, влияющей на накопление компонентов топлива конструкционными материалами, является наличие дефектов в материале. Исследования показали [4], что графит МПГ-8 (как и подавляющее большинство других углеродных материалов) является пористым материалом с открытой пористостью. Большая удельная поверхность графита будет оказывать существенное влияние на газовый баланс топлива в ТЯР. Графит будет захватывать изотопы водорода, а затем под воздействием различных внешних факторов (температура, плазменное облучение) выделять захваченный газ. Также при некоторых условиях возможен процесс химического взаимодействия изотопов водорода с графитом с образованием летучих углеводородных соединений, в условиях токамака приводящих к загрязнению плазмы.

В силу пористости графита методы подготовки (кондиционирования) поверхности ограничиваются, пожалуй, только прогревом. В самом деле, широко обсуждаемые в последнее время методы очистки поверхности в тлеющем разряде или лазерные методы окажутся малоэффективными, так как ионы плазмы не будут проникать в поры и облучать внутреннюю поверхность углеродных материалов.

## ЭКСПЕРИМЕНТ

Для исследований был выбран графит МПГ-8, используемый в отечественных ТЯР в качестве материала лимитера токамака Т-10 и первой стенки Т-15. Плотность графита  $1610 \text{ кг/м}^3$ . Открытая пористость этих материалов находится, в зависимости от плотности, в пределах 10—20%. [4]. Преобладают поры радиусом от 2 до 8 мкм.

В эксперименте использовался образец графита МПГ-8 площадью  $23,7 \text{ см}^2$  и массой 19,088 г (после эксперимента 19,0714 г). До эксперимента образец находился длительное время на атмосфере.

В процессе эксперимента в камеру с нагретым до определённой температуры образцом импульсно через абсолютно калиброванный пьезоклапан напускался дейтерий и анализировались кривые откачки вакуумной камеры и показания масс-спектрометра. Измеряя изменение парциального давления и спектральный состав выделяемых газов после импульсного напуска молекулярного дейтерия в камеру для разных температур образца, можно получить сведения о коэффициентах прилипания частиц на поверхности, характере их адсорбции, энергии связи частиц с поверхностью. В данной работе все экспериментальные исследования проводились на установке AtlaN, состоящей из высоковакуумной камеры, системы откачки, системы контроля абсолютного и парциальных давлений (рис. 1).

Предельное давление в основной камере после прогрева стенок при 500 К в течение 12 ч составляет  $0,7 \cdot 10^{-6} \text{ Па}$ , без проведения этой процедуры —  $0,7 \cdot 10^{-4} \text{ Па}$ . Перед началом эксперимента камера прогревалась в течение 1 ч, таким образом в основной камере достигалось давление  $4 \cdot 10^{-5} \text{ Па}$ .

Для нагрева образца до 600 К использовался внешний нагреватель. Температура измерялась с помощью двух хромель-алюмелевых термопар в герметичных корпусах, находившихся в непосредственном контакте с образцом. Сигнал термопар регистрировался с помощью АЦП.

Калиброванный пьезоклапан изготовлен с использованием пьезопластины, деформирующейся при приложении напряжения к разным электродам пластины и открывающей капилляр, соединяющий калиброванный объём пьезоклапана и вакуумную камеру, куда осуществляется напуск газа. Поток газа через пьезоклапан составлял от 0 до  $1 \cdot 10^{19}$  молекул  $\text{D}_2/\text{с}$ . Перед экспериментом калиброванный объём откачивался до  $6,7 \cdot 10^{-1} \text{ Па}$ , затем наполнялся дейтерием при давлении 50 кПа. Расход газа контролировался по изменению давления в калиброванном объёме пьезоклапана с точностью до  $1 \cdot 10^{17}$  ат. Изготовленный пьезоклапан отличается от стандартных изделий возможностью точно измерять расход газа и временем срабатывания менее 1 мс.

Были проведены измерения зависимости парциального давления дейтерия в вакуумной камере (1) от времени после напуска порции молекулярного дейтерия в камеру (10), где находился образец мелкозернистого графита МПГ-8. Измерения проводились при температуре образца графита от 290 до 590 К.

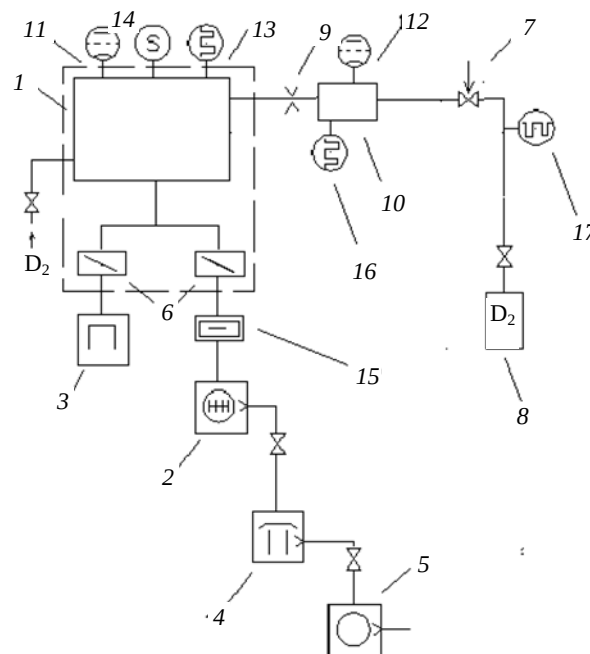


Рис. 1. Вакуумная схема: 1 — вакуумная камера; 2 — ТМН-200; 3 — НОРД-400; 4 — пароструйный насос ПТИ-7; 5 — форвакуумный насос ВН-1; 6 — вакуумный затвор; 7 — пьезоклапан; 8 — сосуд с дейтерием; 9 — диафрагма проводимостью 0,35 л/с (по воздуху); 10 — малая камера; 11 — ПМИ-27; 12 — вакуумметр Пирани (AIGX, пр-во Voc Edwards); 13 — термопреобразователь; 14 — MX-7304A; 15 — азотная ловушка; 16 — ионизационный вакуумметр (APGX, пр-во Voc Edwards); 17 — деформационный вакуумметр (ASG, пр-во Voc Edwards)

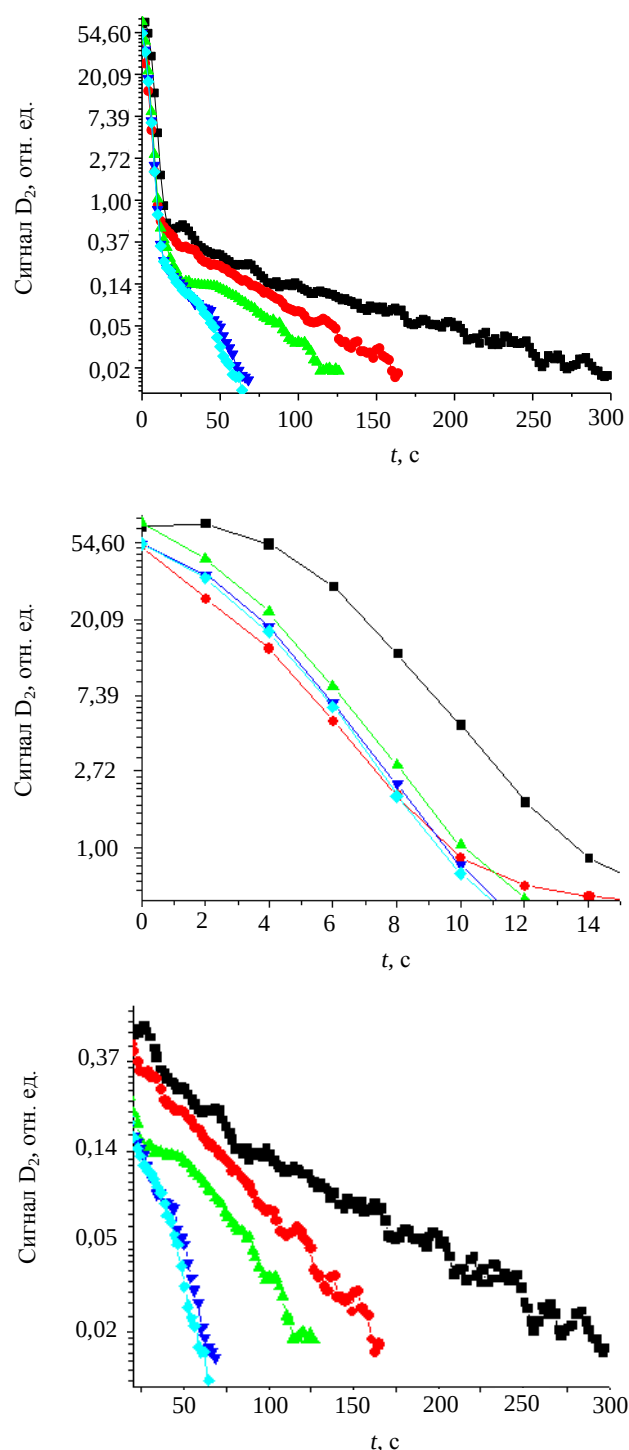


Рис. 2. Зависимость сигнала дейтерия от времени после напуска порции молекулярного дейтерия для разных температур образца графита МПГ-8, находящегося в камере:  $T = 290$  (■),  $380$  (●),  $440$  (▲),  $510$  (▼),  $590$  К (◆)

а Результаты измерений приведены на рис. 2, а. Из графиков видно, что после напуска молекулярного дейтерия сигнал  $D_2$  падает и зависимость сигнала от времени делится на два интервала с существенно разным наклоном:  $0-15$  и  $20-300$  с. Первый интервал, более детально представленный на рис. 2, б, линейен для всех температур в полулогарифмическом масштабе и имеет одинаковый наклон. Этот интервал определяется откачкой напущенного дейтерия из вакуумной камеры и не связан с взаимодействием дейтерия с графитом. Именно такая зависимость наблюдается при напуске дейтерия в пустую камеру (10) без образца графита. Таким образом кривая на рис. 2, б является кривой откачки камеры (10) и полностью описывается уравнениями вакуумной техники.

Второй интервал, детально представленный на рис. 2, в, также линейен в полулогарифмическом масштабе для всех температур образца, но наклон графиков сильно отличается для разных температур.

Характерное время изменения величины парциального давления дейтерия в камере уменьшается с ростом температуры образца, но при температуре больше  $510$  К изменения отсутствуют (см. рис. 2, в), что мы объясняем преобладанием задержки дейтерия в микропустотах пористого дефектного графита над физсорбцией. Таким образом, микропустоты графита являются накопителями газа даже без процесса сорбции дейтерия на поверхности графита, что необходимо учитывать при прогнозировании газового баланса в термоядерных реакторах и выборе типа углеродных материалов.

Для определения энергии активации процесса десорбции газа с поверхности графита  $E_a$  примем, что поток газа с поверхности  $j$  определяется уравнением

$$j(t) = n(t) \exp \left( -\frac{E_a}{kT} \right), \quad (1)$$

где  $n(t)$  — концентрация молекул водорода на поверхности.

Составив систему уравнений из двух уравнений (1), записанных для разных температур, получаем выражение для энергии активации

$$E_a = k \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2} \ln \left[ \frac{\Delta j_1}{\Delta j_2} \frac{\int_0^{\tau} j_2(t') dt'}{\int_0^{\tau} j_1(t') dt'} \right], \quad (2)$$

где  $T_1, T_2$  — температура графита;  $\Delta j_1, \Delta j_2$  — изменение потока дейтерия из образца за время  $\tau$  (уменьшение потока дейтерия в  $e$  раз);  $j_1(t), j_2(t)$  — временная зависимость потока дейтерия из образца для температуры  $T_1$  и  $T_2$  соответственно. Вычисляя  $E_a$  с использованием выражения (2) из экспериментальных данных, полученных при температуре  $290$  и  $440$  К, получили значение энергии активации  $E_a = 6,5$  кДж/моль.

На рис. 3 представлены спектры газа, откачиваемого из вакуумной камеры с графитовым образцом через 30 с после напуска в эту камеру дейтерия. Видно, что если при комнатной температуре в спектре присутствует в основном дейтерий, то при более высоких температурах появляется заметная примесь углеводородов и их количество растёт с ростом температуры графита.

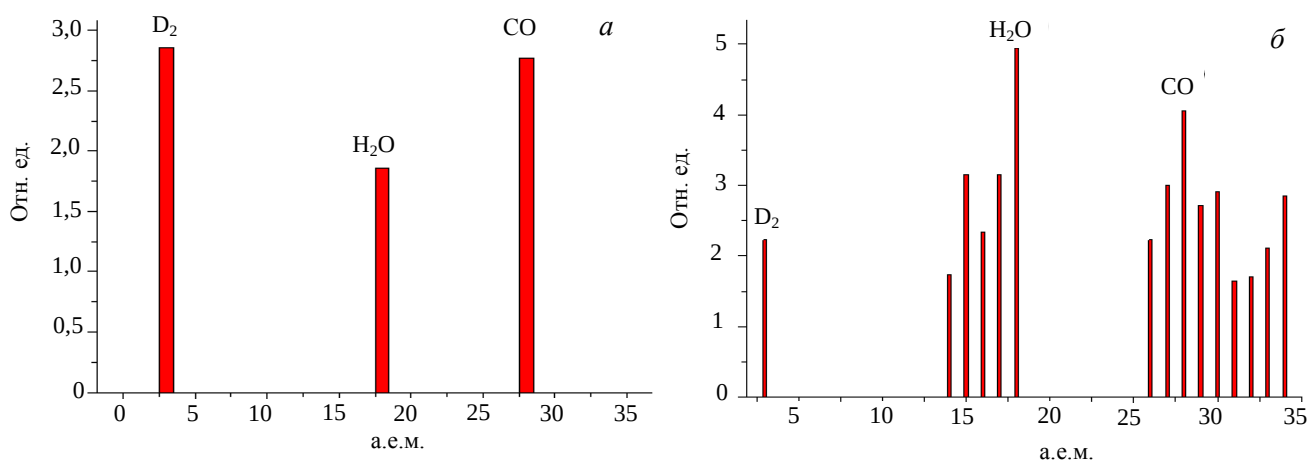
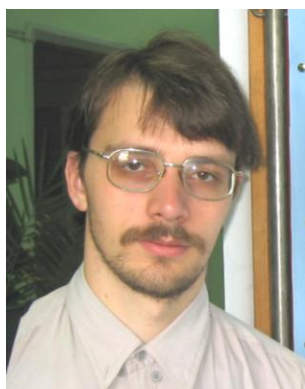


Рис. 3. Спектры газа в основной камере после напуска молекулярного дейтерия в камеру с образцом. температура образца 290 (а) и 590 К (б)

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ



Николай Павлович Бобырь, инженер



Александр Викторович Спицын, н.с., к.ф.-м.н.

Создана установка и разработана методика, позволяющая проводить исследование взаимодействия газа с углеродными материалами при температурах до 600 К. Проведены исследования сорбции и десорбции молекулярного дейтерия графитом МПГ-8.

В результате взаимодействия молекулярного дейтерия с пористым мелкозернистым графитом МПГ-8 дейтерий сорбируется графитом и затем выходит из образца в течение 60—300 с. Выделено два механизма задержки выхода дейтерия из образца: накопление газа в открытых порах и выход из полостей, образованных развитой пористой структурой, сорбция дейтерия на поверхности графита.

Определена энергия активации процесса десорбции молекулярного дейтерия с поверхности графита МПГ-8, составившая 6,5 кДж/моль.

При взаимодействии молекулярного дейтерия с графитом образуются углеводороды и интенсивность их образования растёт с увеличением температуры.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, грант 08-08-13717 офи\_ц.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Romanov P.V., Kolbasov B.N., Alimov V.Kh., Gureev V.M., Domantovskij A.G., Khimchenko L.N., Orlov P.N. Microstructure and deuterium content of tokamak T-10 carbon erosion products. — J. of Nucl. Mater., 2002, vol. 307—311, Part 2, p. 1294—1299.
2. Technical Basis for the ITER Final Design Report. Chapter 2.4. — Vienna: IAEA, 2001.
3. Counsell G., Coad P., Grisola C., Hopf C., Jacob W., Kirschner A., Kreter A., Krieger K., Likonen J., Philipps V., Roth J., Rubel M., Salancon E., Semerok A., Tabares F.L., Widdowson A. Tritium retention in next step devices and the requirements for mitigation and removal techniques. — Plasma Phys. Control. Fusion, 2006, vol. 48, p. B189—B199.
4. Spitsyn A., Pisarev A., Skovoroda A., Gureev V., Martynenko Yu. — J. Nucl. Mater., 2007, vol. 363—365, p. 833—838.
5. Дрёмин М.М., Павлов Ю.Д., Петров Д.Н., Солнцев А.М., Стефановский А.М., Терёбков А.Л. — Физика плазмы, 1987, т. 13, с. 268.

Статья поступила в редакцию 20 апреля 2009 г.

Вопросы атомной науки и техники.

Сер. Термоядерный синтез, 2009, вып. 3, с. 35—38.