

# ИССЛЕДОВАНИЕ КАРБИДА ЛИТИЯ В КАЧЕСТВЕ ТРИТИЙВОСПРОИЗВОДЯЩЕГО МАТЕРИАЛА ДЛЯ БЛАНКЕТА ТЕРМОЯДЕРНОГО РЕАКТОРА

*М.В. Алена, В.П. Колотов, Ю.М. Платов<sup>1</sup>*

*Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН,*

*Москва, Россия*

*E-mail: alenina@geokhi.ru;*

*<sup>1</sup>Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН,*

*Москва, Россия*

Проведен расчёт коэффициента воспроизводства трития (КВТ) для карбида лития ( $\text{Li}_2\text{C}_2$ ). Расчётное значение КВТ для  $\text{Li}_2\text{C}_2$  приблизительно на 33...42 % больше, чем для ортосиликата лития ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ), и на 28 % больше, чем для метатитаната лития ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ). Образование трития в карбиде лития по реакции  $\text{Li}^6(n, \text{T})\text{He}^4$  увеличивается на один порядок, если в расчётах учесть замедление нейтронов карбидом лития.

## ВВЕДЕНИЕ

В термоядерном реакторе для поддержания ДТ-реакции необходимо постоянное пополнение тритием активной зоны реактора, поэтому все проекты термоядерных установок имеют зону воспроизводства трития – бланкет. Это довольно сложная конструкционная часть реактора, которая включает такой компонент, как бридер. Выбор материала и агрегатного состояния бридера представляет собой серьёзную проблему. Материал бридера должен обеспечивать не только высокий выход трития по соответствующим ядерным реакциям, но и легкое высвобождение последнего для передачи в систему подготовки топлива. Анализ докладов, представленных на международной конференции [1] по материалам для термоядерного реактора, показывает, что наиболее часто в качестве бридерного материала предлагаются литиевые керамики, такие как  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  и  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ . Метатитанат лития ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ) привлекает к себе внимание благодаря высокой скорости высвобождения трития при сравнительно низких температурах (от 200 до 400 °С) и химической стабильности. А ортосиликат лития ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) отличается слабой активностью, стойкостью к гидратации, а также увеличенным выходом трития за счет относительно более высокого содержания в нем лития.

Нами исследован карбид лития ( $\text{Li}_2\text{C}_2$ ) в качестве перспективного тритийвоспроизводящего материала для бланкета термоядерного реактора (ТЯР). Цель работы – сравнить коэффициенты воспроизводства трития (КВТ) карбида лития и литиевых керамик ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  и  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ). При этом было оценено влияние эффекта замедления нейтронов в карбиде лития на увеличение наработки в нем трития.

## СВОЙСТВА КАРБИДА ЛИТИЯ

Карбид лития – бесцветное, хрупкое кристаллическое вещество. Плотность его при обычной температуре составляет 1,65 г/см<sup>3</sup>. Карбид лития может быть получен при непосредственном взаимодействии лития и углерода ( $2\text{Li} + 2\text{C} \rightarrow \text{Li}_2\text{C}_2$ ) в вакууме при 650...700 °С или при нагревании лития

в токе ацетилен или этилена [2-4]. Промышленное производство карбида лития ведётся в СССР с 80-х годов прошлого столетия. Синтез карбида лития может быть проведен с использованием компонентов особой чистоты, что вкупе с простой технологией его синтеза потенциально обеспечит высокую чистоту продукта и по элементам-примесям. По данным, полученным при изучении системы литий–углерод [3],  $\text{Li}_2\text{C}_2$  может существовать в нескольких полиморфных модификациях; температуры перехода: 410, 440 и 550 °С. Вода разлагает  $\text{Li}_2\text{C}_2$  со взрывом вследствие выделения водорода, другим продуктом реакции является элементный углерод [2]. При высоких температурах карбид лития интенсивно диссоциирует на металлический литий и графит. Давление диссоциации при 925 °С составляет 0,35 кгс/см<sup>2</sup> [4].

С точки зрения обслуживания или утилизации компонентов ТЯР, при выводе его из эксплуатации важно знать степень активации материалов бридера. Ранее проведенные исследования [5] показали, что значения суммарной активности продуктов трансмутационных превращений изотопов, входящих в состав карбида лития и литиевых керамик ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  и  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ), облученных нейтронами термоядерного реактора (флюенсом  $2 \cdot 10^{23}$  см<sup>-2</sup>), одного порядка. А после трех лет охлаждения (выдержки) материалов основным компонентом остаточной радиоактивности является тритий ( $\beta$ -активный нуклид с периодом полураспада 12,35 лет). Мощность эквивалентной дозы наведенной радиоактивности гипотетически чистого карбида лития через одну минуту после прекращения облучения быстро достигает биологически безопасного уровня ( $2,3 \cdot 10^{-5}$  Зв/ч), что упрощает техническое обслуживание этой конструкционной части установки. Значение массы образовавшегося трития в карбиде лития в 1,5...2,6 раза больше по сравнению с литиевыми керамиками:  $\text{Li}_4\text{SiO}_4$  и  $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ . Скорость наработки трития из 100 кг карбида лития составляет

$\approx 1 \cdot 10^{-6}$  г/с, что неплохо согласуется с данными, приведенными в работе [6].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ КОЭФФИЦИЕНТ ВОСПРОИЗВОДСТВА ТРИТИЯ

Для обеспечения топливного цикла реактора количество образующихся атомов трития на один термоядерный нейтрон (коэффициент воспроизводства трития  $k$ ) должно быть больше 1,05 [6]. Конструкционная модель литиевого blankets, предложенная авторами работы [6], предполагает наличие минимального количества лития  $\sim 100$  кг. В такой модели blankets коэффициент воспроизводства трития равен 1,28. В статье [7] приводится величина  $k = 2$  для blankets толщиной 2 м, выполненного из металлического лития в отсутствие отражателя нейтронов. Такая разница в данных для одного и того же материала, по всей видимости, может объясняться как различием конструкций и нейтронных спектров источника, так и тем, учтены ли в расчётах величины поглощения и утечки нейтронов или нет.

Для расчёта КВТ в карбиде лития рассмотрим бесконечную среду из  $\text{Li}_2\text{C}_2$ , в которой движутся нейтроны с энергией 14 МэВ. Предполагаем, что утечки нейтронов нет, а изотопный состав карбида лития соответствует природной смеси лития и углерода (7,42 %  $\text{Li}^6$  и 92,58 %  $\text{Li}^7$ ; 98,9 %  $\text{C}^{12}$  и 1,1 %  $\text{C}^{13}$ ). Ранее было показано [5], что наибольшее количество трития в карбиде лития нарабатывается на литии (99,985 % от общей концентрации трития) и лишь 0,015 % образуется на изотопе углерода-13. Рассмотрим ядерные реакции, в результате которых идёт наработка трития в материале.

Реакция  $\text{Li}^7(n,n'T)\text{He}^4$  приводит к наработке трития на каждый поглощенный нейтрон и «нового» нейтрона, который потом может прореагировать с другим изотопом лития, что приведет к образованию еще одного ядра трития. Правда, реакция  $\text{Li}^7(n,n'T)\text{He}^4$  возможна в довольно узком энергетическом интервале: от 3,2 до 20 МэВ (рис. 1, линия 2), но именно для нейтронов с энергией около 14 МэВ эта реакция имеет максимальное значение сечения и на порядок больше сечения реакции (n,T) на литии-6. КВТ по упомянутой реакции на изотопе  $\text{Li}^7$  ( $k_{\text{Li-7}}$ ) можно записать в следующем виде [8]:

$$k_{\text{Li-7}} = 1 + k',$$

$$\text{где } k' = 1 - \exp \left\{ - \int_0^\infty \frac{\Sigma_a(u) du}{\xi \Sigma_s(u)} \right\}. \quad (1)$$

Таким образом,

$$k_{\text{Li-7}} = 2 - \exp \left\{ - \int_0^\infty \frac{\sigma_a(u) du}{\xi \sigma_s(u)} \right\}. \quad (2)$$

В формуле (1)  $\Sigma_a$  – макроскопическое сечение реакции (n,n'T);  $\xi \Sigma_s$  – замедляющая способность карбида лития;  $u$  – логарифм, равная  $u = \ln(E_0/E)$ , где  $E_0$  – константа, которая задается (часто в расчётах принимают  $E_0 = 2$  МэВ);  $E$  – энергия, которой

обладает нейтрон в результате упругих столкновений с ядрами  $i$ -го компонента среды (процесс замедления нейтрона в среде).

В выражении (2)  $\sigma_a$  и  $\sigma_s$  – микроскопические сечения реакции (n,n'T) и рассеяния нейтронов соответственно.

Замедляющая способность  $k$  компонентов сложной среды определяется выражением:

$$\xi \Sigma_s = \xi_1 \Sigma_{s_1} + \xi_2 \Sigma_{s_2} + \dots + \xi_k \Sigma_{s_k} = \sum_{i=1}^k \xi_i \Sigma_{s_i}. \quad (3)$$

Здесь  $i=1, 2, \dots, k$ ;  $\Sigma_s$  – макроскопическое сечение рассеяния нейтронов ( $\Sigma_s = N \cdot \sigma_s$ , где  $N$  – плотность ядер вещества);  $\xi$  – параметр замедления, который определяется следующей формулой:

$$\xi = 1 + \frac{(A-1)^2}{2A} \ln \frac{A-1}{A+1}, \quad (4)$$

где  $A$  – атомная масса химического элемента, входящего в состав вещества.

По реакции  $\text{Li}^6(n,T)\text{He}^4$  происходит эффективное поглощение нейтронов изотопом лития-6, так как эта реакция протекает на нейтронах с энергией от  $1 \cdot 10^{-5}$  эВ до 20 МэВ (см. рис.1, линия 1). КВТ в изотопе  $\text{Li}^6$  ( $k_{\text{Li-6}}$ ) будет определяться формулой:

$$k_{\text{Li-6}} = 1 - \exp \left\{ - \int_0^\infty \frac{\Sigma_a(u) du}{\xi \Sigma_s(u)} \right\}, \quad (5)$$

где  $\Sigma_a$  – сечение реакции (n,T);  $\xi \Sigma_s$  – замедляющая способность карбида лития.

Реакция  $\text{C}^{13}(n,T)\text{B}^{11}$  проходит только на высокоэнергетических нейтронах (13,5...20 МэВ). КВТ в изотопе  $\text{C}^{13}$  ( $k_{\text{C-13}}$ ) определяется формулой (5).

Итоговое значение коэффициента воспроизводства трития в карбиде лития равно

$$k = k_{\text{Li-6}} + k_{\text{Li-7}} + k_{\text{C-13}}.$$

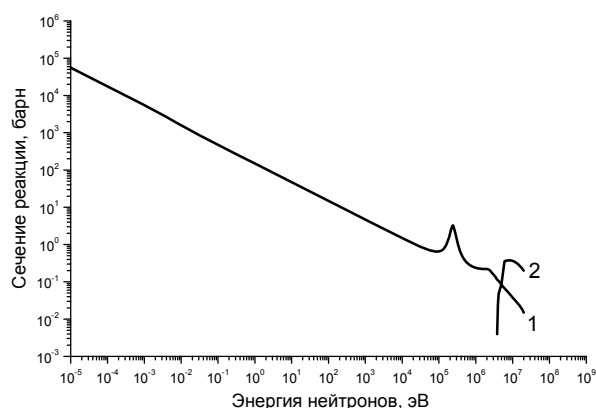


Рис. 1. Зависимость сечения ядерных реакций образования трития от энергии нейтронов:

1 – реакция  $\text{Li}^6(n,T)\text{He}^4$ ;  
2 – реакция  $\text{Li}^7(n,n'T)\text{He}^4$  [9]

Расчётная величина  $k$  для карбида лития, облучаемого нейтронами с энергией 14 МэВ (без учёта утечки нейтронов), равна 1,52. Для сравнения

в ортосиликате лития ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) в зависимости от обогащения материала по  $^6\text{Li}$  КВТ меняется в интервале от 1,069 [10] до 1,147 [11], а для метатитаната лития ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ) составляет 1,185 [11].

Таким образом, рассчитанный КВТ в карбиде лития превышает в 1,45 раза необходимое минимальное значение (1,05) для топливного цикла реактора и больше величин  $k$  для предлагаемых в последнее время литиевых керамик. Экспериментальных данных по определению  $k$  для карбида лития пока нет. В работе [12] приведены значения КВТ в литиевой сфере толщиной 50 см, покрытой слоем графита толщиной 20 см, рассчитанного с помощью различных программ (таблица) и полученного экспериментальным путем [13]. Несмотря на разницу значений расчётных и экспериментальных данных (от 9 до 23 %), полученная на практике величина КВТ (1,13) в комбинированной сферической системе  $\text{Li}$  (50 см) +  $\text{C}$  (20 см) превышает порог, равный 1,05, и сопоставима по величине с рассмотренными литиевыми керамиками.

Коэффициент воспроизводства трития  
в комбинированной сферической системе  
 $\text{Li}$  (50 см) +  $\text{C}$  (20 см)

Источник	КВТ
Экспериментальные данные [13]	1,13
Расчётные данные [13]	1,03
JENDL-3.2	1,295
BROND-2.1	1,394
FENDL-2.0	1,288

### ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ЭФФЕКТА ЗАМЕДЛЕНИЯ НЕЙТРОНОВ В КАРБИДЕ ЛИТИЯ НА НАРАБОТКУ ТРИТИЯ

Углерод и литий являются эффективными замедлителями нейтронов и обеспечивают термализацию нейтронного спектра. Так, например, авторы работы [12] считают, что КВТ в сферической системе  $\text{Li}$  (50 см) +  $\text{C}$  (20 см) больше в два раза, чем в литиевой сфере толщиной 50 см именно из-за отраженного слоем графита потока термализованных нейтронов, возвращенного в литиевую сферу. Распределение замедляющихся нейтронов по энергиям в непоглощающей среде (т.е. среде, где замедляющиеся нейтроны не поглощаются) можно представить в виде следующего выражения [14]:

$$n(E) = \sqrt{\frac{m_n}{2}} \cdot \frac{q}{\xi \Sigma_s \cdot E^{3/2}}, \quad (6)$$

где  $m_n$  – масса нейтрона ( $m_n=1$  а.е.м.);  $q$  – скорость генерации нейтронов (или плотность потока нейтронов до замедления);  $E$  – энергия нейтрона;  $\xi \Sigma_s$  – замедляющая способность среды, рассчитываемая по формуле (5). Количество атомов

лития (или углерода) в карбиде лития (36,8 вес.% лития и 63,2 вес.% углерода) массой 1 кг определяется выражением:

$$N = \frac{1000 \cdot 6,02 \cdot 10^{23} \cdot n}{M_{\text{Li}_2\text{C}_2}}, \quad (7)$$

где  $n$  – число атомов  $\text{Li}$  (или  $\text{C}$ ) в молекуле  $\text{Li}_2\text{C}_2$ ;  $M_{\text{Li}_2\text{C}_2}$  – молекулярная масса  $\text{Li}_2\text{C}_2$ .

Для построения прогнозируемого спектра замедляющихся нейтронов в карбиде лития будем использовать спектр нейтронов термоядерного реактора [15], обозначенный как спектр ДЕМО (рис. 2, сплошная часть линии 1). Этот спектр не содержит данных по распределению тепловых нейтронов. Однако в области тепловых нейтронов ( $1 \cdot 10^{-5} \dots 1$  эВ) сечение реакции образования трития из лития-6 отличается исключительно высокими значениями, составляя  $\sim 10^4 \dots 10^2$  барн. В связи с этим проведена экстраполяция функции, описывающей нейтронный спектр ДЕМО, до значения энергии нейтронов 0,1 эВ (см. рис. 2, пунктирная часть линии 1). Затем для ряда точек полученного нейтронного спектра рассчитали значения замедляющей способности карбида лития по выражению (3) и подставили полученные данные в формулу (6). В итоге получили прогнозируемый спектр нейтронов в  $\text{Li}_2\text{C}_2$  с учетом эффекта их замедления (см. рис. 2, линия 2). На данном рисунке видно увеличение доли замедляющихся нейтронов с энергией менее 1 МэВ, что должно способствовать увеличению наработки трития по реакции  $\text{Li}^6(n,T)\text{He}^4$ . Для численного определения влияния эффекта замедления нейтронов на наработку трития с помощью программы АСТИВА [16] был проведен расчёт интегральных сечений ядерных реакций, происходящих в литии для следующих энергетических распределений нейтронов: спектра ДЕМО и спектра нейтронов в карбиде лития с учетом их замедления (см. рис. 2, линия 2). Расчётное значение интегрального сечения реакции  $(n,T)$  на литии-6 для спектра замедленных карбидом лития нейтронов на один порядок больше интегрального сечения этой же реакции для спектра ДЕМО. Учитывая, что масса образовавшегося радиоактивного изотопа в материале прямо пропорциональна сечению реакции образования этого изотопа, то наработка трития по реакции  $\text{Li}^6(n,T)\text{He}^4$  будет в 10 раз больше при учёте замедления нейтронов в карбиде лития.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение карбида лития в качестве тритий-воспроизводящего материала для ТЯР перспективно:

- рассчитанный КВТ из карбида лития (1,52) с «запасом» превышает необходимое значение (1,05);
- это эффективный замедлитель, который в 10 раз повышает выход трития на изотопе  $\text{Li}$ -6.

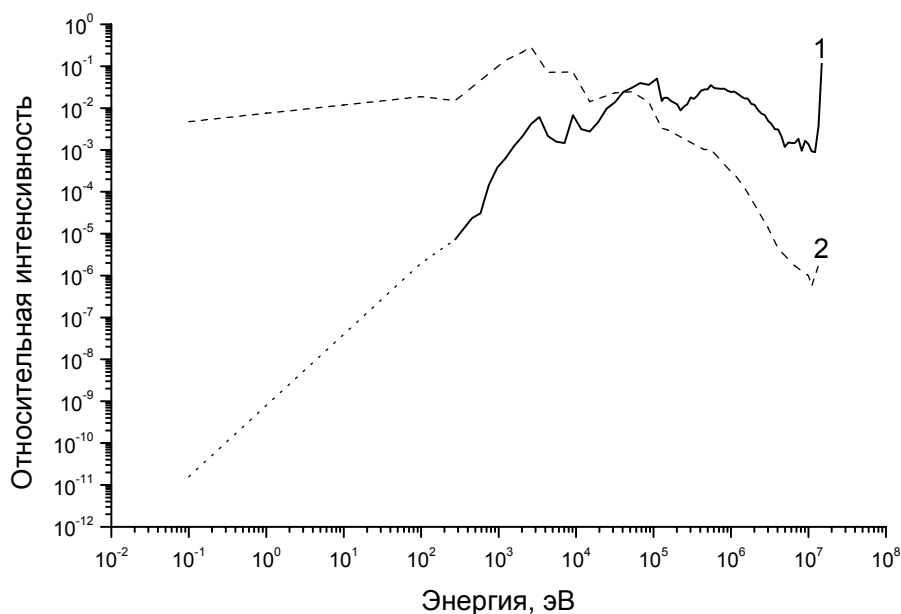


Рис. 2. Нейтронные спектры: 1 – спектр нейтронов термоядерного реактора (сплошная линия); 2 – прогнозируемый спектр замедляющихся нейтронов в карбиде лития. (Интенсивности спектра нормированы к единице)

## БИБЛИОГРАФИЧЕСКИЙ СПИСОК

1. Fusion Reactor materials. Proceedings of the 13<sup>th</sup> International Conference on Fusion Reactor materials (ICFRM-13), Nice, France, 10-14 December, 2007 // *Journal of Nuclear Materials*. 2009, v. 386-388, 1110 p.
2. В.Е. Плющев, Б.Д. Степин. *Химия и технология соединений лития, рубидия и цезия*. М.: «Химия», 1970, 408 с.
3. П.И. Федоров, Су Мян-Цзэн, Хусюэ Сюэбао. Исследование системы литий-углерод // *Acta Chimica Sinica*. 1957, v. 23, N 1, p. 30-39.
4. В.К. Гришин, М.Г. Глазунов, А.Г. Аракелов, А.В. Вольдейт, Г.С. Македонская. *Свойства лития*. М.: «Металлургиздат», 1963, 117 с.
5. М.В. Аленина, В.П. Колотов, Ю.М. Платов. Карбид лития в качестве нового перспективного материала для бридера термоядерного реактора // *Труды XXII Международной конференции «Радиационная физика твердого тела»* (Севастополь, 9 июля – 14 июля 2012 г.). М.: ФГБНУ «НИИ ПМТ», 2012, с. 409-418.
6. В.Н. Михайлов, В.А. Евтихин, И.Е. Люблинский, А.В. Вертков, А.Н. Чуманов. *Литий в термоядерной и космической энергетике XXI века*. М.: «Энергоатомиздат», 1999, 528 с.
7. В.И. Пистунович, Г.Е. Шаталов. Термоядерный реактор на основе токамака // *Итоги науки и техники. Серия «Физика плазмы»*. 1981, т. 2, с.138-189.
8. А.А. Куйкабаева. *Массоперенос трития, генерируемого в литиевой керамике при воздействии нейтронного облучения*: Дис. Алматы: Казахский национальный университет им. Аль-Фараби, 2008, 147 с.
9. Evaluated Nuclear Data File (ENDF/B-VII). Brookhaven National Laboratory, 2011. <http://www.nndc.bnl.gov/exfor/endl00.jsp>
10. Б.Н. Колбасов и др. Концепция демонстрационного термоядерного энергетического реактора ДЕМО-С // *Вопросы атомной науки и техники. Серия «Термоядерный синтез»*. 2007, в. 4, с. 3-13.
11. D. Aquaro, N. Cerullo, I. Ciucci, D. Morellini. Adaptation of the HCPB DEMO TBM as breeding blanket for ITER: Neutronic and thermal analyses // *Fusion Engineering and Design*. 2007, v. 82, p. 2226-2232.
12. A.R. Sharma, D. Chandra, S. Chaturvedi, S. Ganesan. Analysis of integral benchmark experiments with latest evaluated nuclear data // *Journal of Nuclear Science and Technology*. Supplement 2, August 2002, p. 1151-1154.
13. F. Mackawa. *Collection of experimental data for fusion neutronics benchmark*. Tokyo: Japan Atomic Energy Research Institute, 1994, 302 p.
14. В.Е. Левин. *Ядерная физика и ядерные реакторы*. М.: «Атомиздат», 1975, 284 с.
15. E.T. Cheng, R.A. Forrest, A.B. Pashchenko. *Report on the Second International Activation Calculation Benchmark Comparison Study*. INDC(NDS)-300. IAEA, Vienna, 1994, 23 p.
16. В.В. Иванов, В.П. Колотов, В.В. Атрашкевич, Ю.М. Платов. *Программное обеспечение для расчета активации материалов при нейтронном облучении и некоторые аспекты его применения*: Препринт №134 ГЕОХИ РАН. М., 1991, 33 с.

Статья поступила в редакцию 28.11.2012 г.

## ДОСЛІДЖЕННЯ КАРБІДУ ЛІТІЮ В ЯКОСТІ ТРИТІЙВІДТВОРИЮЮЧОГО МАТЕРІАЛУ ДЛЯ БЛАНКЕТА ТЕРМОЯДЕРНОГО РЕАКТОРА

*М.В. Аленіна, В.П. Колотов, Ю.М. Платов*

Проведено розрахунок коефіцієнта відтворення тритію (КВТ) для карбіду літію ( $\text{Li}_2\text{C}_2$ ). Розрахункове значення КВТ для  $\text{Li}_2\text{C}_2$  приблизно на 33...42 % більше, ніж для ортосилікату літію ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) і на 28 % більше, ніж для метатитанату літію ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ). Утворення тритію в карбіді літію за реакцією  $\text{Li}^6(n,\text{T})\text{He}^4$  збільшується на один порядок, якщо в розрахунках врахувати уповільнення нейтронів карбідом літію.

## INVESTIGATION OF LITHIUM CARBIDE AS TRITIUM BREEDING MATERIALS FOR BLANKET OF FUSION REACTOR

*M.V. Alenina, V.P. Kolotov, Yu.M. Platov*

The tritium breeding ratio (TBR) has been calculated for lithium carbide ( $\text{Li}_2\text{C}_2$ ). Estimated value of the TBR for  $\text{Li}_2\text{C}_2$  approximately 33...42 % higher than for lithium orthosilicate ( $\text{Li}_4\text{SiO}_4$ ) and 28 % greater than for lithium metatitanate ( $\text{Li}_2\text{TiO}_3$ ). The yield of tritium in the lithium carbide will be higher in 10 times by nuclear reaction  $\text{Li}^6(n,\text{T})\text{He}^4$ , if in the calculation takes into account the moderation of neutrons in  $\text{Li}_2\text{C}_2$ .