

РЕСПУБЛИКАНСКОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ ПРЕДПРИЯТИЕ НА ПРАВЕ
ХОЗЯЙСТВЕННОГО ВЕДЕНИЯ «ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ» (РГП ИЯФ)

УДК: 621.039.633

Аханов Асыл Мақсатұлы

МЕТОДИЧЕСКИЕ ЭКСПЕРИМЕНТЫ ПО ИССЛЕДОВАНИЮ ГАЗОВЫДЕЛЕНИЯ ИЗ
ФУНКЦИОНАЛЬНЫХ МАТЕРИАЛОВ ТЕРМОЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ

Работа, представленная на XIX конференцию–конкурс НИОКР
молодых ученых и специалистов
Национального ядерного центра Республики Казахстан
(прикладные исследования)

Руководитель:
Зав. лабораторией ЛПБАЭ

А.А. Шаймерденов

Курчатов 2020

АВТОР

Аханов Асыл Мақсатұлы
1992 года рождения,
специальность – информационные системы,
работает в лаб. проблем безопасности атомной энергий (ЛПБАЭ) с 2016 г.,
общий стаж работы 5 лет

СПИСОК ИСПОЛНИТЕЛЕЙ

Зав. лабораторией



13.04.2020 А.А. Шаймерденов

подпись, дата

Старший научный сотрудник



13.04.2020

Ш.Х. Гизатулин

подпись, дата

Инженер



13.04.2020

А.М. Аханов

подпись, дата

Инженер



13.04.2020

С.К. Аскербеков

подпись, дата

РЕФЕРАТ

Работа состоит из 25 страниц, 19 рисунков, 2 таблиц, 11 формул, 16 источников.

Объект исследования: бридерные материалы термоядерных реакторов (ТЯР).

Цель работы: Методическая отработка системы регистрации газов вновь созданной установки на реакторе ВВР-К по исследованию газовыделения из бридерных материалов ТЯР.

Задачи исследований:

1. Разработать и создать установку на реакторе ВВР-К по исследованию газовыделения из бридерных материалов ТЯР.
2. Разработать и изготовить оптимальную конструкцию экспериментального облучательного устройства.
3. Провести вне-реакторные методические эксперименты и проанализировать полученные результаты.

Методика исследований: Метод вакуумной экстракции и масс-спектрометрический метод.

Результат работ: Отработана методика регистрации газовыделения из бридерных материалов ТЯР.

Актуальность: Изучение поведения конструкционных материалов термоядерных реакторов в условиях облучения и при взаимодействии с изотопами водорода, а также установление основных закономерностей взаимодействия этих факторов с материалами, которые планируются к использованию в термоядерных реакторах в качестве функциональных. Для этого создана новая установка на базе исследовательского реактора ВВР-К, которая позволит решать задачи материаловедения.

Научная новизна: Состоит в получении экспериментальной зависимости связывающей потоки газов из области исследуемых образцов в установку с парциальными давлениями, регистрируемыми в области масс-спектрометра при проведении внутриреакторных экспериментов.

Практическая ценность: Разработана и создана установка по исследованию газовыделения из материалов ТЯР. Получены экспериментальные данные для правильной интерпретации регистрируемого газовыделения из материалов ТЯР при проведении внутриреакторных экспериментов.

Личный вклад автора: Участие в научной работе на всех стадиях исследований: разработка установки и экспериментального устройства, анализ результатов нейтронно-физических и теплофизических расчетов, проведение экспериментов, анализ и обработка результатов экспериментов.

Публикации:

1. Дюсамбаев Д.С., Гизатулин Ш.Х., Шаймерденов А.А., Сильнягин П.П., **Аханов А.М.**, Буртебаев Н.Т., Уета Ш. Отработка технологии электрохимического разделения топливного элемента ВТГР // Вестник НЯЦ РК, вып.1 (77), 2019, с.79-84
2. Чихрай Е.В., Аскербек С.К., Шаймерденов А.А., Гизатулин Ш.Х., **Аханов А.М.**, Кенжин Е.А., Кабулбек Е.Б. Теплофизические расчеты реакторной ампулы для исследования газовыделения из литийсодержащих материалов при проведении экспериментов на реакторе ВВР-К // Вестник НЯЦ РК, вып.1 (77), 2019, с.52-59

ПЕРЕЧЕНЬ СОКРАЩЕНИЙ, УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ, СИМВОЛОВ, ЕДИНИЦ И ТЕРМИНОВ

ТЯР – термоядерный реактор

ВВР-К – водо-водяной реактор Казахстанец

ЗК – загрузочная капсула

АУ – ампульное устройство

ХА – хромель-алюмель

ЭК – экспериментальный канал

12Х18Н10Т – марка стали

АЗ – активная зона

ТМН – турбомолекулярный насос

МС – масс-спектрометр

Р – датчик давления

ЦАЗ – центр активной зоны

СОДЕРЖАНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	7
1. Краткое описание и схема установки.....	7
2. Разработка конструкции амулы.....	9
2.1. Вакуумные расчеты.....	9
2.2. Нейтронно-физические и теплофизические расчеты.....	11
3. Изготовление ампульного устройства	15
4. Методические эксперименты	17
ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	23
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	24

ВВЕДЕНИЕ

Исследования взаимодействия газов с конструкционными материалами ядерных и термоядерных реакторов способствуют решению одной из основных проблем физики твердого тела - разработке фундаментальных основ создания конструкционных материалов с длительным сроком функционирования в условиях интенсивных термических, радиационных, химических, механических и других внешних воздействий [1, 2].

Важными и актуальными задачами являются изучение поведения конструкционных материалов ядерных и термоядерных реакторов в условиях облучения и при взаимодействии с изотопами водорода, а также установление основных закономерностей взаимодействия этих факторов с материалами, которые планируются к использованию в термоядерных реакторах в качестве функциональных. Основная функция, которую выполняют данные материалы, заключается в способности набирать тритий, являющийся одним из компонентов термоядерного топлива.

В 2018 году, в рамках программы МОН РК №BR05236400, на реакторе ВВР-К, была начата разработка и создание современной установки, которая позволит исследовать процессы газовой выделения из материалов ядерных и термоядерных реакторов. Проанализировав существующие установки на других исследовательских реакторах и применяемые там методы регистрации газовой выделения, а также учитывая особенности реактора ВВР-К был выбран метод вакуумной экстракции для исследования газовой выделения из материалов [3-10].

Разработаны принципиальная схема установки и оптимальная конструкция экспериментального облучательного устройства. Проведены нейтронно-физические и теплофизические расчеты облучательного устройства, а также вакуумные расчеты установки для различных геометрий вакуумного тракта. Для регистрации газовой выделения используется квадрупольный масс-спектрометр, компании Stanford Research System.

В связи с тем, что общая длина облучательного устройства составляет около 5 м и во время облучения образцы устанавливаются в нижней части устройства, где контроль давления технически не возможен, были проведены вне-реакторные методические эксперименты. Суть экспериментов заключалась в определении калибровочных коэффициентов, которые связывают потоки газов из области исследуемых образцов с парциальными давлениями, регистрируемыми в области масс-спектрометра. Проведенные методические эксперименты являются важным этапом перед вводом установки в эксплуатацию и полученные результаты необходимы для правильной интерпретации газовой выделения при реакторных экспериментах.

1. Краткое описание и схема установки

В первую очередь проведен сравнительный обзор методик исследования процессов наработки и выделения трития из литийсодержащих материалов ТЯР в условиях реакторного облучения. На основе выполненного обзора была определена оптимальная методика и принципиальная схема эксперимента по испытаниям литийсодержащих материалов ТЯР на реакторе ВВР-К. Предложенная схема основана на методике определения выделяющегося потока в условиях вакуумной экстракции при непрерывной откачке.

В состав установки входят такие основные элементы как:

- ампульное устройство (АУ);
- вакуумная система откачки;
- информационно измерительная система.

Основная часть установки - это экспериментальное АУ, выполненное из стальной трубы, которая устанавливается в канал загрузки (КЗ), обеспечивая размещение

исследуемого образца на уровне центра активной зоны (ЦАЗ) реактора ВВР-К. Конструкция АУ позволяет загружать и выгружать капсулу с образцом через верхний загрузочный фланец, что дает возможность многоразового использования АУ. Соединения элементов всей высоковакуумной системы выполнены через вакуумные соединители стандарта KF (Kwik-Flange). Рабочий диапазон давлений KF-соединительных элементов от 1 атм. до $1 \cdot 10^{-8}$ Торр и выдерживают нагрев до 150 °С.

Вакуумная система откачки – это высоковакуумной без масляный откачной пост TPS-Flexu-304FS, на базе турбомолекулярного насоса Turbo-V 304 FS и сухого спирального насоса IDP-7 (производитель Agilent Technologies).

Измерительное оборудование обеспечивает управление, измерение и регистрацию параметров систем установки. В него входят: квадрупольный масс-спектрометр RGA-100 для анализа остаточных газов в полости установки, регистратор многоканальный технологический (PMT-59) для регистрации и отображения показаний датчиков давления (VSH87DL) и термопар (хромель-алюмель), автоматизированное управление клапанами и мониторинг (АУКМ). Масс-спектрометр RGA-100 позволяет регистрировать газы в диапазоне масс от 1 до 100 а.е.м. Принцип регистрации газов основан на том, что небольшая доля молекул газа ионизируется, получившиеся положительные ионы разделяются по массам и измеряются. Детектором служит цилиндр Фарадея.

На рисунке 1 приведена принципиальная схема установки.

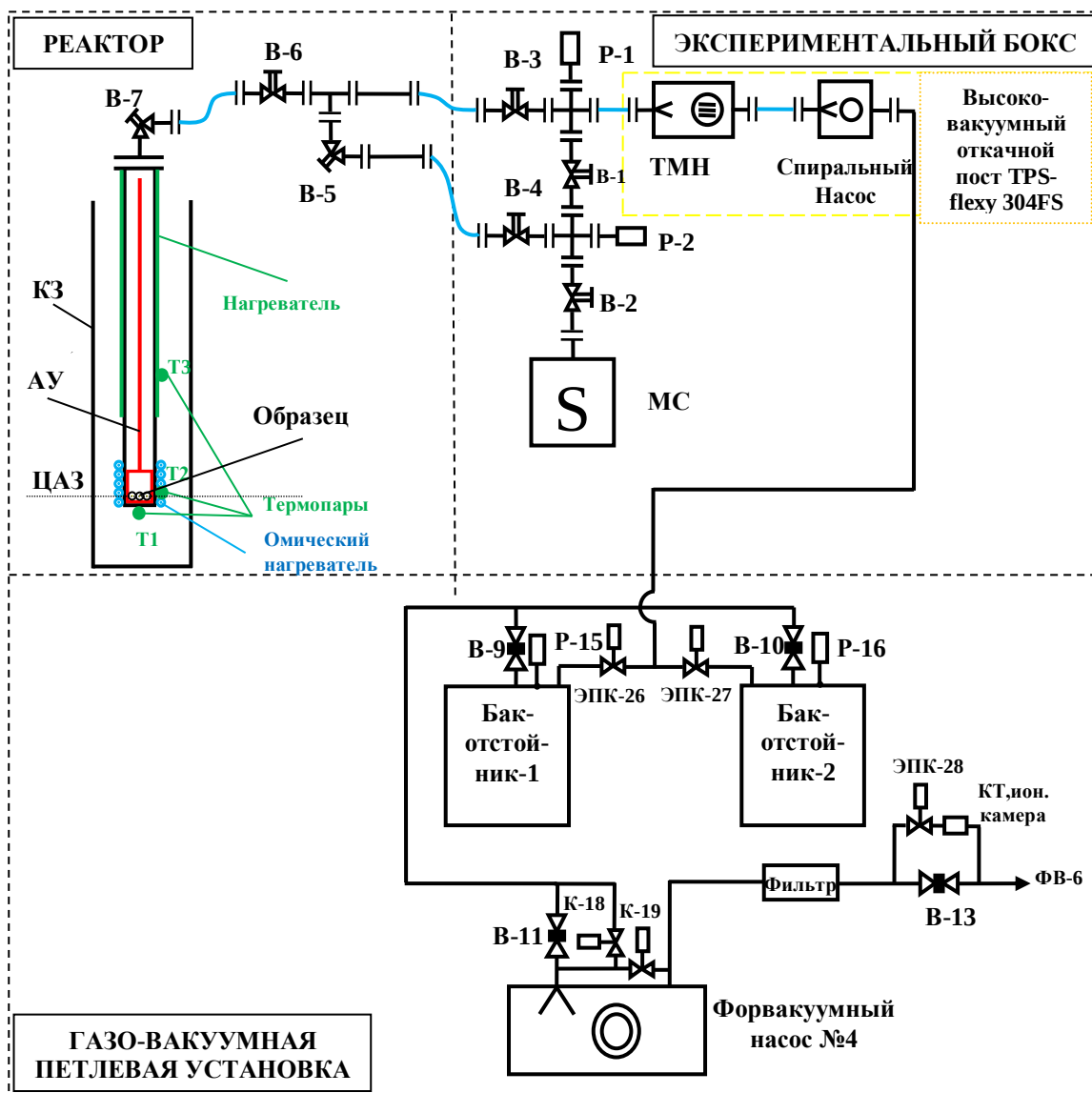


Рисунок 1. Принципиальная схема установки по исследованию газовой выделению из материалов ТЯР на реакторе ВВР-К (АУ – ампульное устройство, КЗ – канал загрузки, В – клапан вакуумный, Р – датчик давления, ТМН – турбомолекулярный насос, МС – масс-спектрометр, ЭПК – электро-пневматический клапан)

Во время реакторных экспериментов весь вакуумный тракт прогревается ленточными нагревателями ЭНГЛУ-400, и поддерживается при температуре 100 °С. Электроприборы установки, в том числе откачной пост и масс-спектрометр, установлены в экспериментальном боксе в максимальной близости к АУ и управляются удаленно по сети (IP-протокол), обеспечивая безопасную работу оператора установки во время эксперимента.

2. Разработка конструкции ампулы

2.1. Вакуумные расчеты

Целью вакуумных расчетов являлось оценка диапазона и распределения давлений по длине облучательного устройства и вакуумной системы для различных геометрии системы и потоков газовой выделению трития ($10^{-11} - 10^{-8}$ моль/с).

Выбранная расчетная геометрия устройства представляла систему из АУ (длиной 4 м, диаметром 15 мм или 17,5 мм или 20 мм), выходного трубопровода из нержавеющей стали длиной 4 метра и внутренним диаметром 10 мм, и соединительного патрубка, длиной 0,5 м, линейно сопрягающего выходную трубу (диаметром 10 мм) с входным фланцем ТМН (100 мм).

Для расчетов была использована 3-х мерная осе-симметричная модель, по которой все элементы находятся на одной оси, длиной 8,5 м, что не влияет на точность расчетов и общность полученных результатов.

Расчетная задача стояла в том, чтобы для заданных значений: температуры внутренней поверхности устройства, входного потока газа и скорости откачки вакуумного насоса посчитать распределение концентрации и давления водорода (или другого газа) по длине всей системы в процессе работы устройства.

Вычислительная задача сводится к разбиению общей поверхности системы на конечные элементы и расчету требуемых интегралов G , P и n . В нашем случае для этой цели использовалась система решения инженерных задач Comsol Multiphysics [11]. В цилиндрической системе координат такой поток газа G пришедший с некой поверхностной точки X' в другую поверхностную точку X описывается интегралом по поверхности S :

$$G = - \int_{S'} \frac{J' \cdot (\mathbf{n} \cdot \mathbf{r}) \cdot (\mathbf{n}' \cdot \mathbf{r})}{\pi r^4} dS', \quad (1)$$

где J' - исходящий поток из точки X' , $\mathbf{r}$ - вектор расстояния между точками X' и X , $\mathbf{n}'$ и $\mathbf{n}$ - соответствующие векторы плотности газа в окрестностях точек X' и X .

Аналогично рассчитываются поверхностное давление газа P

$$p = - \int_{S'} \frac{J' \cdot (\mathbf{n} \cdot \mathbf{r})^2 \cdot (\mathbf{n}' \cdot \mathbf{r}) \cdot M_n}{\pi r^5 N_A} \langle C'_{3D} \rangle dS + \frac{2J \cdot M_n}{3N_A} \langle C'_{3D} \rangle, \quad \langle C'_{3D} \rangle = \sqrt{\frac{9\pi RT'}{8M_n}}, \quad (2)$$

и число частиц на поверхности n :

$$n = - \int_{S'} \frac{J' \cdot (\mathbf{n} \cdot \mathbf{r})}{\pi r^3} \langle \frac{1}{C'_{3D}} \rangle dS' + 2 \langle \frac{1}{C_{3D}} \rangle J, \quad \langle \frac{1}{C_{3D}} \rangle = \sqrt{\frac{\pi M_n}{8RT'}}, \quad (3)$$

где M_n - молярная масса газа, N_A - число Авогадро, R - газовая постоянная, T - температура,

здесь $\langle c_{3D} \rangle$ и $\langle c'_{3D} \rangle$ – средняя скорость движения частиц газа (для 3D-геометрии) в окрестности точки X и X', соответственно, записанная как приведено в [12].

Расчет проводится для интервала времени 0-1800 секунд (30 минут). Для большей наглядности полученных результатов расчета в модели задается, что входной поток газа имеет импульсный характер и подается с 500 секунды до 1000 секунды. Характерные зависимости изменения давления водорода в вакуумной системе на различных расстояниях от насоса приведены на рисунке 2.

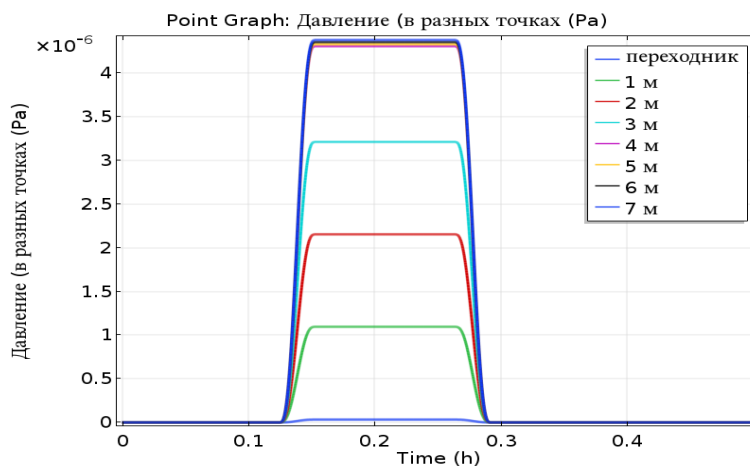
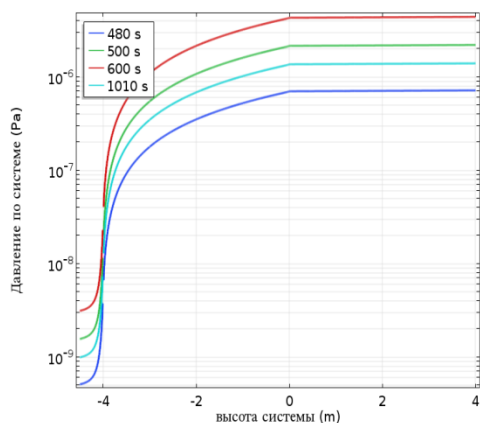
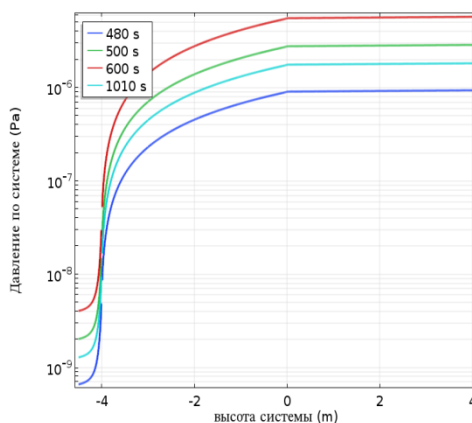


Рисунок 2. Динамика изменения давления на различных расстояниях от насоса при подаче импульса потока 10^{-9} моль/с на входе системы

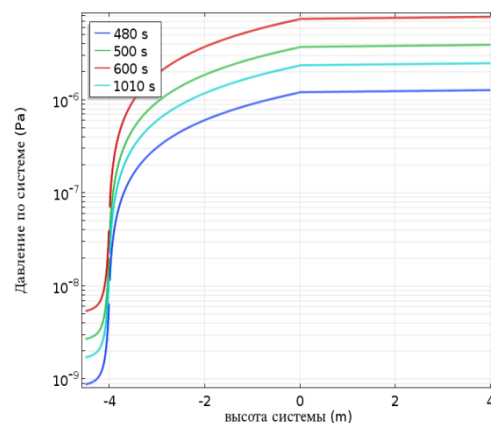
Полное распределение давления по системе для различных моментов времени показаны на рисунке 3 (а). На рисунках 3 (b,c) приведены результаты аналогичных расчетов для диаметров ампулы 17,5 мм и 15 мм, соответственно. Аналогичные данные получены для потоков 10^{-10} моль/с (рисунок 4) и 10^{-11} моль/с (рисунок 5).



(a) Диаметр ампулы 20 мм

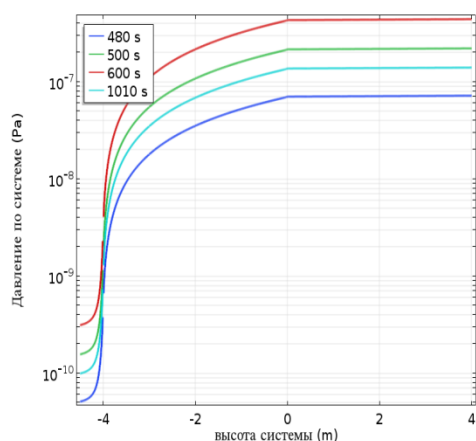


(b) Диаметр ампулы 17,5 мм

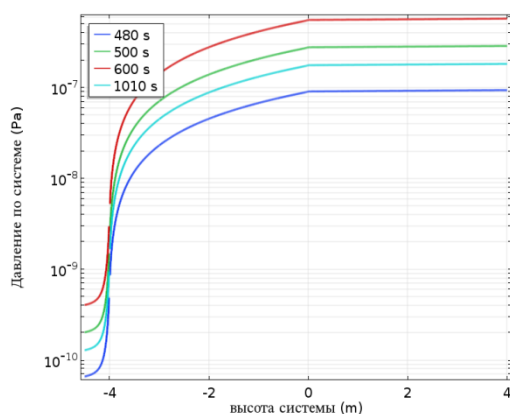


(c) Диаметр ампулы 15 мм

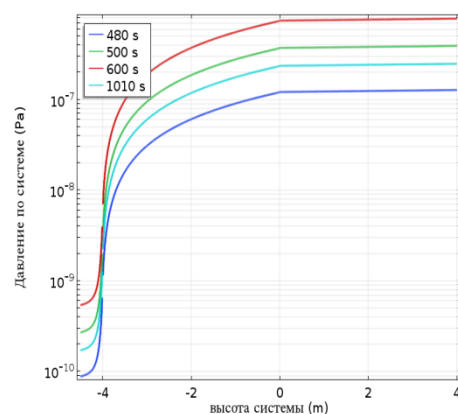
Рисунок 3. Давление по трубе в момент подачи потока (600с - стационар) Поток 10^{-9} моль/с, источник – справа (отметка 4 м), откачка 200 л/с – слева (отметка -4,5 м), радиус выходной трубы 5 мм.



(a) Диаметр ампулы 20 мм

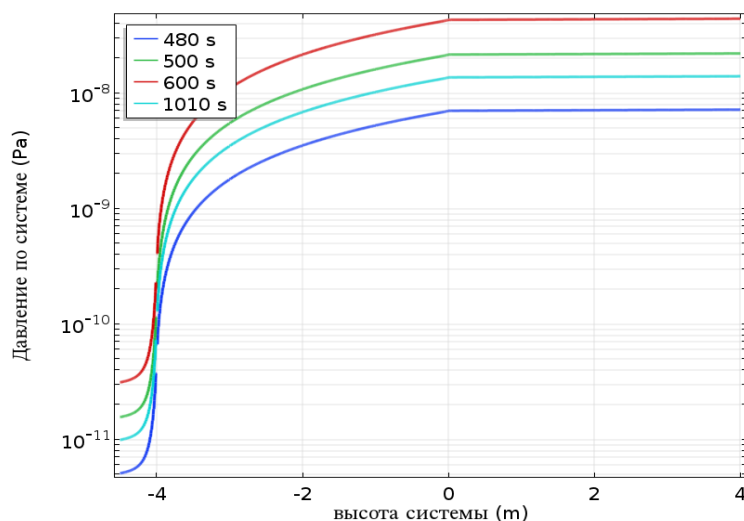


(b) Диаметр ампулы 17,5 мм



(c) Диаметр ампулы 15 мм

Рисунок 4. Давление по трубе в разные моменты подачи потока (600 с - стационар) Поток 10^{-10} моль/с, источник – справа (отметка 4 м), откачка 200 л/с – слева (отметка -4,5 м), радиус выходной трубы 5 мм.



Диаметр ампулы 20 мм

Рисунок 5. Давление по трубе в разные моменты подачи потока (600 с - стационар) Поток 10^{-11} моль/с, источник – справа (отметка 4 м), откачка 200 л/с – слева (отметка -4,5 м), радиус выходной трубы 5 мм.

Видно, что полученные зависимости в целом отвечают физической картине эксперимента:

- 1) Наибольшее давление в области подачи потока газа в установку.
- 2) Наблюдается практически линейный спад давления по трубопроводам, причем скорость падения давления выше в трубопроводе меньшего диаметра.

Полученные значения распределения давления показывают, что в целом физическая возможность зарегистрировать поток трития и гелия в системе будет достаточный для уровней наработки трития и гелия в исследуемых образцах выше 10^{-11} моль/с.

2.2. Нейтронно-физические и теплофизические расчеты

Нейтронно-физические расчеты проведены с применением компьютерной программы MCNP (Monte Carlo N-particle), в которой для моделирования траектории движения нейтронов и других частиц используется метод Монте-Карло, т.е. это

численный метод для изучения случайных процессов [13, 14]. В расчетах использовалась библиотека сечений взаимодействия нейтронов с веществом ENDF/B-VII [15].

В результате проведенных нейтронно-физических расчетов были определены радиационный разогрев и скорость реакций на изотопе литий-6 с образованием трития. Материальный состав рассмотренных элементов, следующий: ампула – нержавеющая сталь марки 12X18H10T, литиевая керамика – $\text{LiSiO}_4 + 25\%\text{Li}_2\text{TiO}_3$.

Ядерные концентрации литиевой керамики: Li - $2,82857 \cdot 10^{22}$ ядер/см³, Si - $1,15714 \cdot 10^{22}$ ядер/см³, Ti - $1,5 \cdot 10^{21}$ ядер/см³, O - $2,925 \cdot 10^{22}$ ядер/см³.

Радиационный разогрев для литиевой керамики составил $(24,0 \pm 0,4)$ Вт/г, а для ампулы из нержавеющей стали $(0,53 \pm 0,01)$ Вт/г. Абсолютное значение скорости реакций ${}^6\text{Li} + n \rightarrow \text{T} + {}^4\text{He} + 4.79\text{МэВ}$ составило $7,2 \cdot 10^{14}$ реакций/см³.

Проведены теплофизические расчеты динамики нагрева и распределения температурных полей для облучательной капсулы из нержавеющей стали содержащих различные материалы бридеров ТЯР: литиевую керамику и свинцово-литиевую эвтектику [16]. В расчетах полагалось, что тепловыделение в керамике равно 82,3 Вт/см³, в свинцово-литиевой эвтектике 16,8 г/см³ и в стали 4 Вт/см³. Отдельно был рассчитан нагрев капсул без образцов.

В расчетах полагалось, что капсула охлаждается свободным конвекционным потоком воздуха в канале и теплоотдачей излучением, внутренняя часть капсул находится в вакууме. Расчеты проводились для нескольких значений степени черноты стали, температура внешней стенки канала была принята равной 300 К, поток воздуха в канале описывался как ламинарный. Отдельно был проведен расчет при предположении, что ампула находится в воде.

Для моделирования тепло-массопереноса использован мультифизический модуль Nonisothermal Flow, интегрирующий в себе субмодули Heat Transfer in Fluids и Laminar Flow для расчета теплопереноса в потоке воздуха, контактирующего с поверхностью капсулы, и для расчета распределение скоростей и давления в потоке, соответственно.

Модуль Heat Transfer in Fluids interface моделирует процессы, описываемые уравнением:

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \rho C_p \mathbf{u} \cdot \nabla T + \nabla \cdot \mathbf{q} = Q, \quad (4)$$

где: ρ - плотность (кг/м³), C_p - удельная теплоемкость при постоянном давлении (Дж/(кг·К)), T - абсолютная температура (К), $\mathbf{u}$ - вектор скорости (м/с) (для твердотельных доменов $\mathbf{u}=0$), $\mathbf{q}$ - вектор потока тепла теплопроводности и излучения (Вт/м²).

Модуль Laminar Flow моделирует ламинарный поток слабо-сжимаемого воздуха который описывается уравнением Стокса:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho \mathbf{u}) = 0, \quad (5)$$

$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + \rho (\mathbf{u} \cdot \nabla) \mathbf{u} = \nabla \cdot \left[-p \mathbf{I} + \mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) - \frac{2}{3} \mu (\nabla \cdot \mathbf{u}) \mathbf{I} \right] + \mathbf{F} + \rho \mathbf{g}, \quad (6)$$

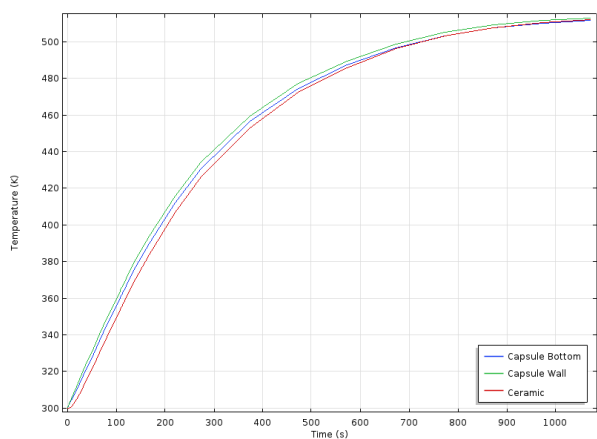
$$\rho \frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} - \nabla \cdot \mu (\nabla \mathbf{u} + (\nabla \mathbf{u})^T) + \rho \mathbf{u} \cdot \nabla \mathbf{u} + \nabla p = 0, \quad (7)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{u} = 0, \quad (8)$$

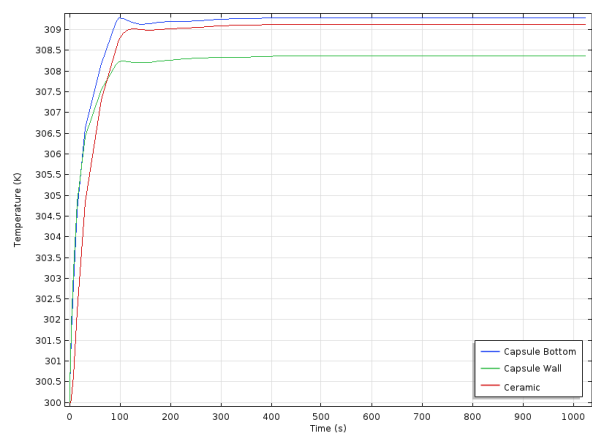
где: p - давление (Па), $\mathbf{F}$ - вектор объемной силы (Н/м³), $\mathbf{I}$ - безразмерный тензор неоднородности динамической вязкости, $\mathbf{g}$ - вектор ускорения гравитации (м²/с), μ - динамическая вязкость (Па·с).

Одновременно рассчитывались температура, скорость течения и давление воздуха, охлаждающего ампулу. Рассчитана динамика изменения температуры дна капсулы, ее стенки в районе расположения исследуемого образца и в самом образце.

Результаты расчетов приведены на рисунках 6-10. На рисунке 6 приведены результаты расчета нагрева ампулы без образцов (отключено тепловыделение из керамики).

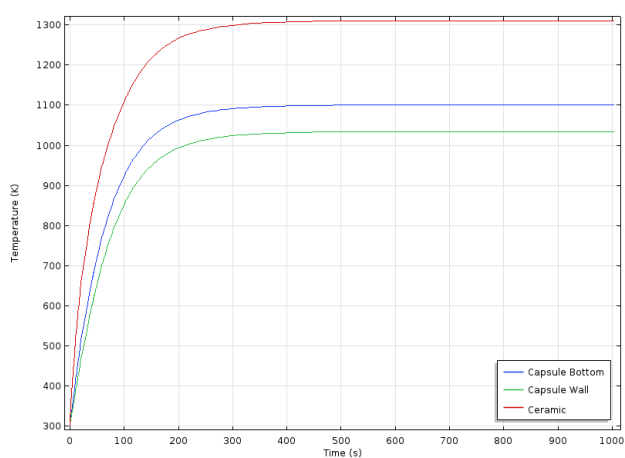


а) ампула расположена в сухом канале

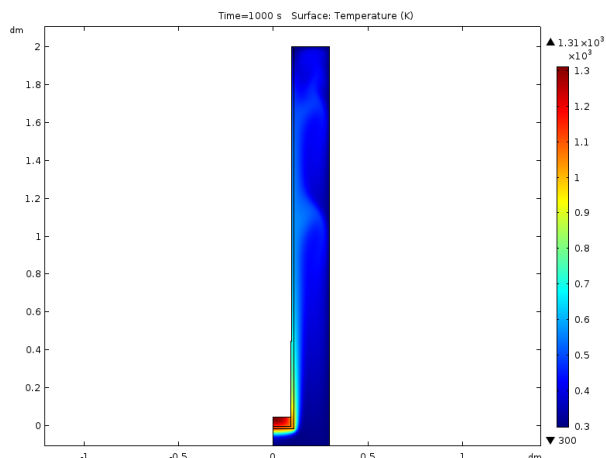


б) ампула расположена в канале с водой при 300 К

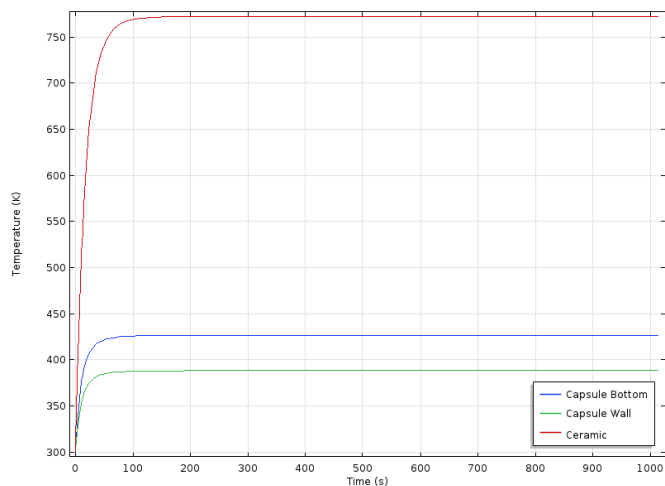
Рисунок 6. Результаты изменения температуры ампулы без образцов во время облучения



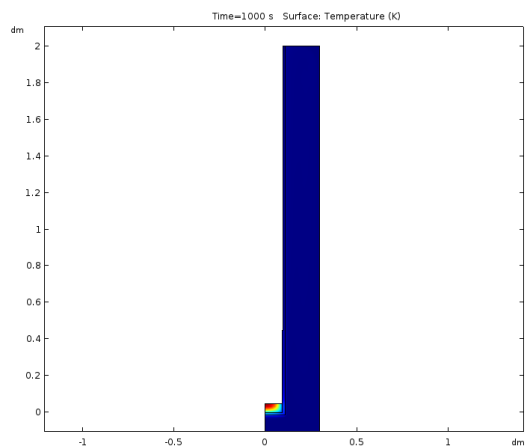
а) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в сухом канале;



в) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в сухом канале

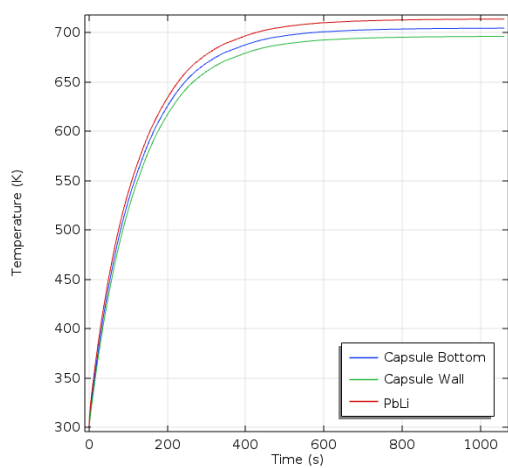


б) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в канале с водой

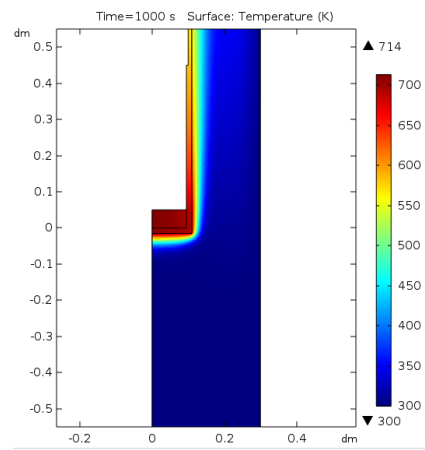


г) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в канале с водой

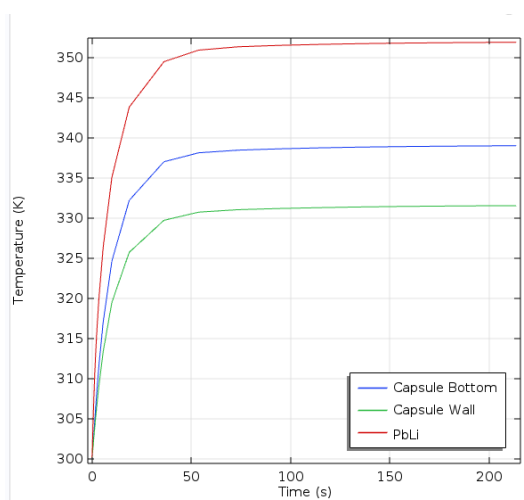
Рисунок 7. Результаты расчета температурных полей по ампуле с литевой керамикой во время облучения



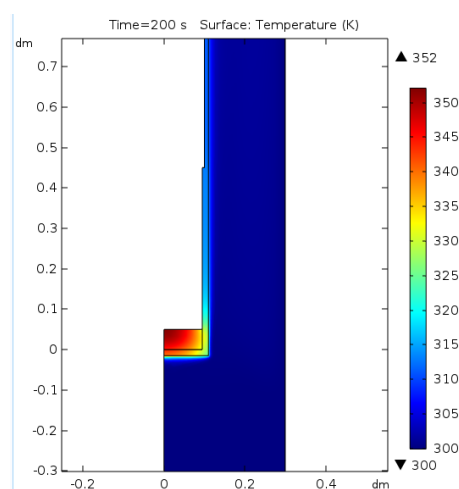
а) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в сухом канале



в) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в сухом канале



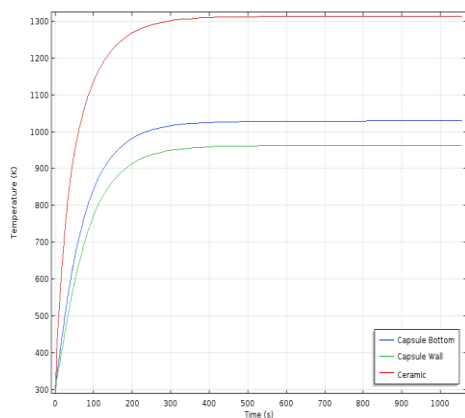
б) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в сухом канале



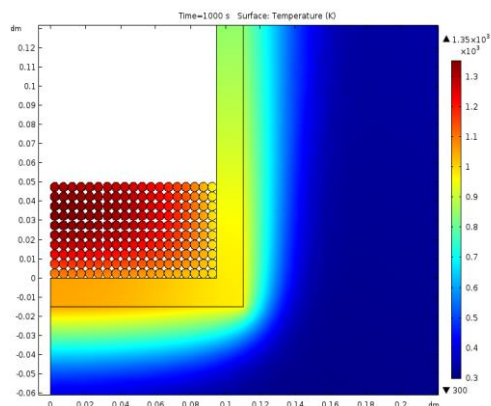
г)

г) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в канале с водой

Рисунок 8. Результаты расчета температурных полей по ампуле со свинцово-литиевой эвтектикой во время облучения

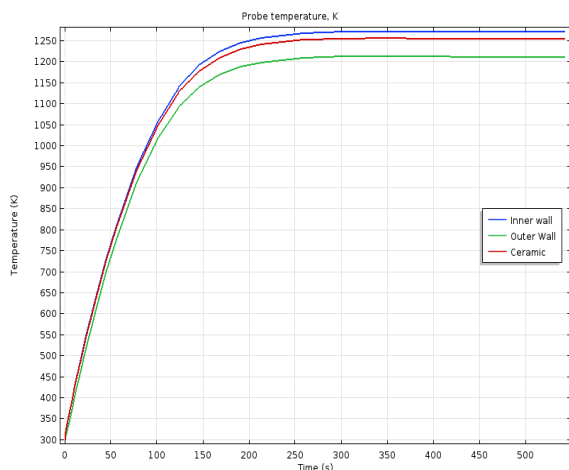


а) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в сухом канале

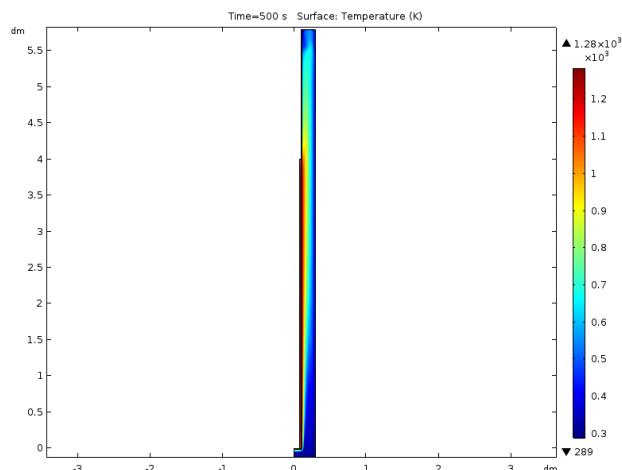


б) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в сухом канале

Рисунок 9. Результаты расчета температурных полей по ампуле с литиевой керамикой (засыпка из шариков диаметром 0,5 мм) во время облучения



а) временная зависимость изменения температуры ампулы с керамикой, расположенной в сухом канале



б) распределение температуры по ампуле в квазиравновесном состоянии в сухом канале

Рисунок 10. Результаты расчета температурных полей по ампуле с литиевой керамикой (расположенные по стенкам из шариков диаметром 0,5 мм) во время облучения

Как видно из рисунка 8 максимальная температура ампулы составляет не более 573 К (для сухого канала) и не более 373 К (для канала с водой) – что в целом определяет нижнюю температуру исследования в реакторных экспериментах с материалами ТЯР.

Достаточно высокая температура керамики (для всех расчетов) обусловлена большими значениями энерговыделения в ней и относительно низкой теплопроводностью.

Таблица 1. Результаты расчетов нагрева ампулы по типу расположения в канале и образцам.

Тип образца	Без образцов		LiSiO ₄ + 25%Li ₂ TiO ₃		Li ₁₇ Pb ₈₃	
Тип расположения в канале	сухой	с водой	сухой	с водой	сухой	с водой
Максимальная расчетная температура, К	573	373	1300	773	723	350

3. Изготовление экспериментального облучательного устройства

На основе предварительных вакуумных, нейтронно-физических и теплофизических расчетов, оценок материального состава ампульного устройства с учетом всех конструктивных особенностей выбранного экспериментального канала исследовательского реактора ВВР-К, была подготовлена схема облучательного устройства представленная на рисунке 11.

Исследуемые образцы будут размещены внутри загрузочной капсулы (ЗК), а он в свою очередь в откачиваемой экспериментальной ячейке. Для обеспечения необходимых температурных режимов ампульное устройство (АУ) было снабжено термпарным нагревателем. Для измерения температуры в области образца были установлены, согласно представленной схеме, термпары типа ХА.

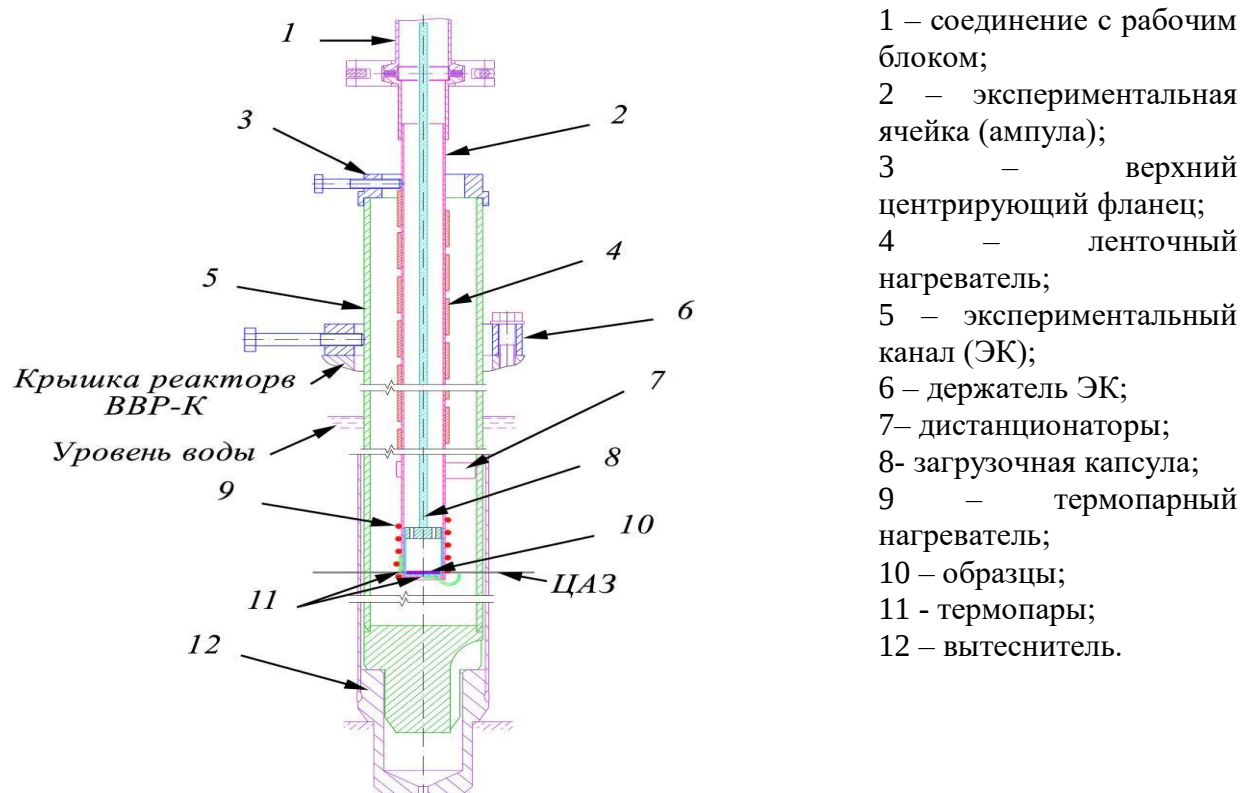


Рисунок 11. Схема облучательного устройства

Детали АУ и ЗК изготовлены из нержавеющей стали 12Х18Н10Т и ЭК из алюминиевого сплава САВ-1.

На рисунке 12 показана фотография АУ после сборки.

После сборки ампульное устройство было проверено на герметичность газовыми методами: способом “гелиевого шупа” и способом “обдува гелием”, согласно правилам и нормам в области атомной энергетики (ПНАЭ Г-7-019-89).



Рисунок 12. АУ в сборе

4. Методические эксперименты

Целью проведения методических экспериментов было определение калибровочных коэффициентов, которые связывают потоки газов из области исследуемых образцов в установку с парциальными давлениями, регистрируемыми в области масс-спектрометра. После данной калибровки, можно вычислить абсолютные концентрации или абсолютные парциальные давления компонентов газовой смеси.

Для реализации схемы методического эксперимента в принципиальную схему установки была добавлена система подачи газа, которая на рисунке 13 выделена красным пунктиром. Также была изготовлена АУ, полностью соответствующая по геометрии и материальному составу АУ предложенной для проведения реакторных экспериментов, но с добавлением сквозного отверстия для возможности организации потока газов через АУ, а именно изготовлен входной фланец стандарта ДУ6 на дне ампулы.

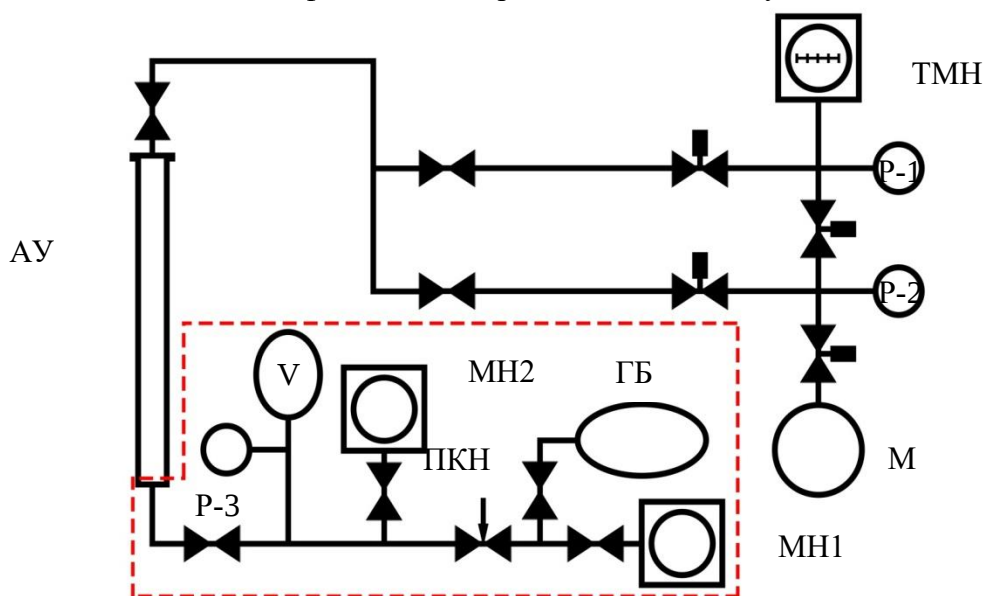


Рисунок 13. Принципиальная схема установки для проведения методических экспериментов: АУ – ампульное устройство; ТМН – турбомолекулярный насос; МС – масс-спектрометр; Система подачи газа (МН – механический насос; ПКН – пьезокерамический натекатель; ГБ – баллон с газом; V – объем; P – датчик давления).



Рисунок 14. Внешний вид установки: слева общий вид, справа система подачи газа

Принцип работы системы подачи газа заключается в следующем: пьезокерамический натекатель (ПКН) с обеих сторон откачивается механическими насосами (МН1-2) до давления порядка 10^{-2} торр, после, из баллона с газом (ГБ) через ПКН организуется постоянный поток исследуемого газа.

Схема проведения методических экспериментов заключалась в следующем:

- 1) В откачиваемую насосом ампулу в области, где будут расположены исследуемые образцы (во время реакторного эксперимента) подается газ;
- 2) Далее масс-спектрометром регистрируется равновесное давление газа в установке;
- 3) После этого камера подачи отсекается от откачки и регистрируется увеличение давления газа в этой камере;
- 4) По известным значениям измеренного давления в масс-спектрометре и известной скорости набора газа в камере подачи определяются коэффициенты калибровки.

Таким образом, зная значение потока исследуемого газа через экспериментальную ячейку и показания масс-спектрометра, определяются калибровочные коэффициенты для всех исследуемых газов.

На первом этапе проводился эксперимент по определению рабочих объемов установки.

Процедура заключалась в следующем:

- вся система откачивалась до давления – 10^{-6} торр;
- далее закрывались все клапаны на установке: таким образом, рабочая камера (измерительный тракт установки) делился клапанами на различные объемы;
- в известный объем (V_1) набиралось известное давление газа P_1 , после чего этот объем делился на соседний объем камеры установки, отсекаемый клапаном: общее давление газа падало до значений P_2 ;
- таким образом, последовательным делением увеличивался общий объем камеры, и по формуле (9) определялось значение объема камеры установки:

$$V_x = \frac{V_1(P_1 - P_2)}{P_2}, \quad (9)$$

где V_1 – объем камеры; P_1 – начальное давление в камере V_1 ; P_2 – давление в камере $V_1 + V_x$ после открытия объема V_1 на V_x .

Вторым этапом проводились сами методические эксперименты.

Всего было проведено несколько экспериментов по калибровке, результаты которых хорошо совпали между собой. Остановимся подробнее на одном из характерных экспериментов, полная диаграмма которого приведена на рисунках 15-17.

В представленном эксперименте приведены данные о зависимостях изменения спектров газов в камере установки для различных режимов напуска гелия, дейтерия и водорода в установку. Также приведены зависимости изменения давления в камере подачи при закрытии откачки в ней клапаном.

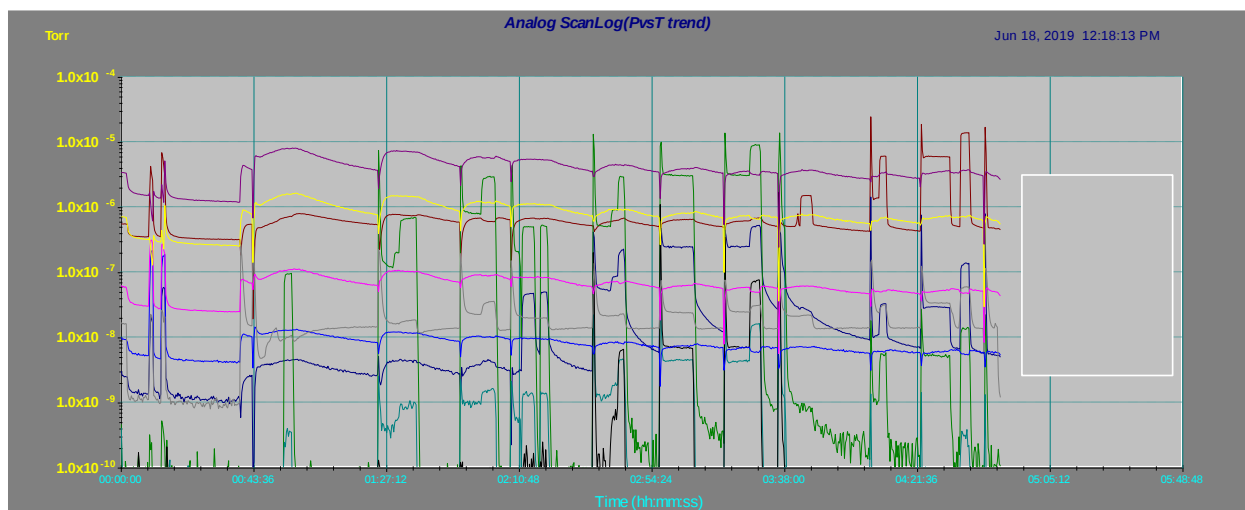


Рисунок 15. Вид экрана программы регистрации масс-спектрометра за все время эксперимента

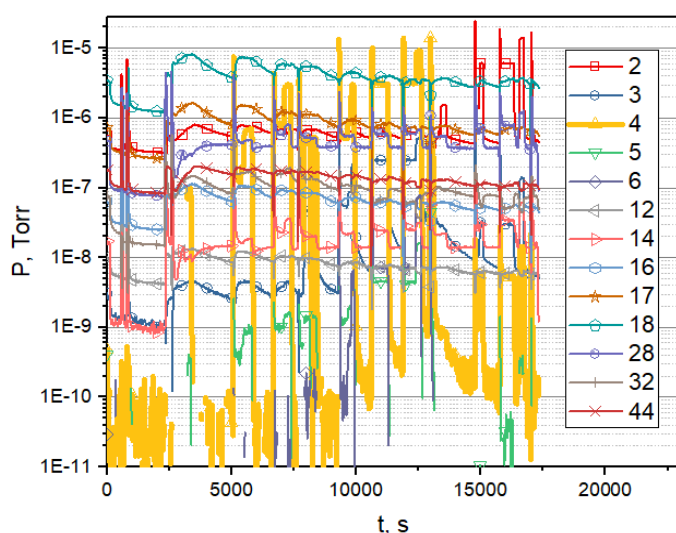


Рисунок 16. Обработанные результаты методического эксперимента регистрации состава газа в установке

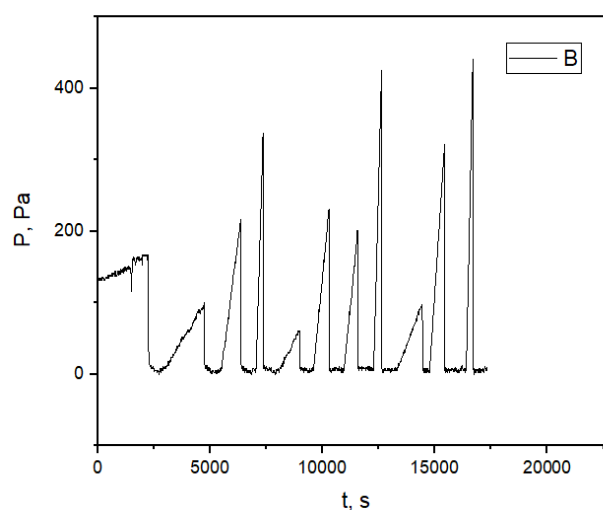


Рисунок 17. Изменение давление в камере подачи газа за время эксперимента

Проиллюстрируем стандартный режим этапа эксперимента по калибровке установки с газом дейтерием (выбран временной интервал эксперимента от 11000 с до 12500 с), который приведен на рисунке 18.

Для удобства график разбит на несколько областей. В области А представлен этап эксперимента, где проводятся измерения газового состава в установке при подаче в установку дейтерия с постоянным газовым потоком. Из рисунка видно, что давление гелия в камере постоянно.

Область В – это этап эксперимента, в котором камера подачи отсекается от откачки и, соответственно, в камере установки наблюдается падение давления дейтерия, в то время как в камере подачи наблюдается рост давления дейтерия. Отметим, что рост давления дейтерия в камере ожидаемо линейный: по результатам данной линейной зависимости в дальнейшем оценивается поток дейтерия, поступающий в систему.

Область С – камера подачи газа открывается на откачку и набранный газ из нее откачивается, соответственно наблюдается рост потока дейтерия в камере установки до стационарного значения, которое равно его давлению в области А.

Область D – через натекатель устанавливается новый поток в камеру установки (в данном случае поток больший по значению, чем поток в областях A-C), что приводит к росту давления дейтерия в системе до некоторого нового стационарного значения.

Область E – это этап эксперимента аналогичный этапу, описанному выше для области B, где камера подачи газа отсекается от откачки.

Таким образом, проводятся эксперименты для различных газов, подаваемых в камеру установки, по которым определяются стационарные значения потоков газов в камеру и соответствующие им стационарные парциальные давления, регистрируемые масс-спектрометром.

Коэффициенты калибровки (моль/(Па·с)) рассчитываются по формуле:

$$K = \frac{\frac{dv}{dt}}{P_{MS}}, \quad (10)$$

где $\frac{dv}{dt}$ – поток газа в установку; P_{MS} – давление, регистрируемое в масс-спектрометре (Па).

Значения потока газа в систему оцениваются по формуле (11)

$$\frac{dv}{dt} = \frac{V}{RT} \left(\frac{dP}{dt} \right), \quad (11)$$

где V – объем камеры подачи газа, который отсекается от установки в методических экспериментах (м^3); R – универсальная газовая постоянная; T – температура газа в камере подачи (принимается равной температуре стенок камеры), K ; $\frac{dP}{dt}$ – линейная скорость увеличения давления газа в камере подачи (Па/с).

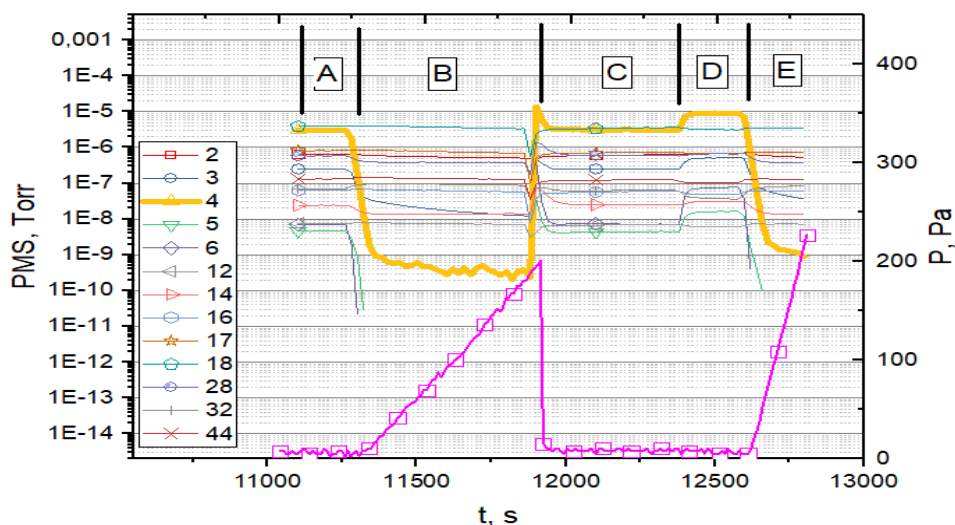


Рисунок 18. Этап эксперимента по калибровке потока дейтерия в камеру установки

Полученные коэффициенты калибровки приведены в таблице 2, которые хорошо совпали для разных уровней потоков в камеру установки.

Таблица 2. Коэффициенты калибровки для различных газов (при уровне потоков в установку $\sim (10^{-8} - 10^{-10}$ моль/с)

Изотоп	H_2	D_2	He
Коэффициент калибровки, моль/(Па·с)	$8,05 \cdot 10^{-6}$	$1,03 \cdot 10^{-5}$	$2,94 \cdot 10^{-5}$

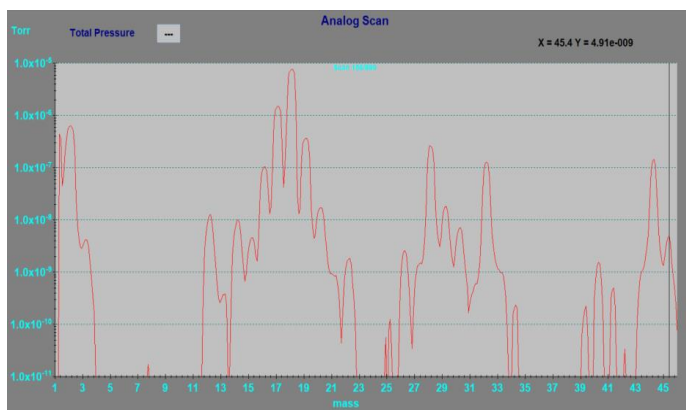
Значения для коэффициентов калибровки дейтерия и водорода оказались близкими по значениям, в то время как коэффициент калибровки по гелию оказался в несколько раз

выше (по всей видимости, более низкая чувствительность масс-спектрометра RGA-100 по гелию связана с его более высоким потенциалом ионизации).

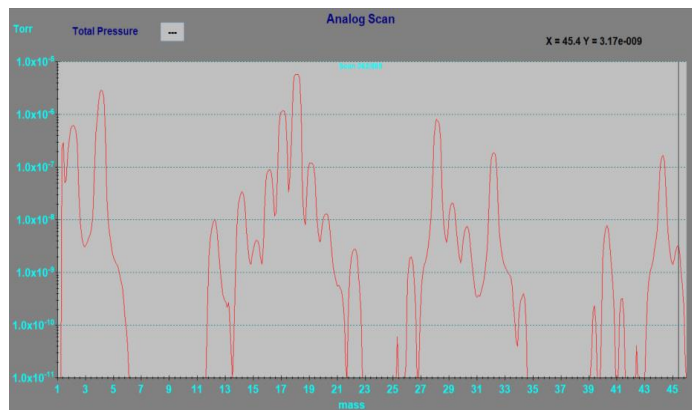
Еще одним результатом методических экспериментов было получение важной информации о наличии дополнительных пиков при регистрации дейтерия масс-спектрометром.

На рисунке 19 представлены характерные масс-спектры при подаче в камеру различных газов. В рассматриваемом эксперименте вначале проводились исследования с гелием, далее дейтерием и после с водородом.

Как видно из рисунка, при подаче гелия в установку на масс-спектре присутствует пик 4 массы, а в остальном масс-спектр повторяет масс-спектр газовой фазы установки в условиях без натекания.



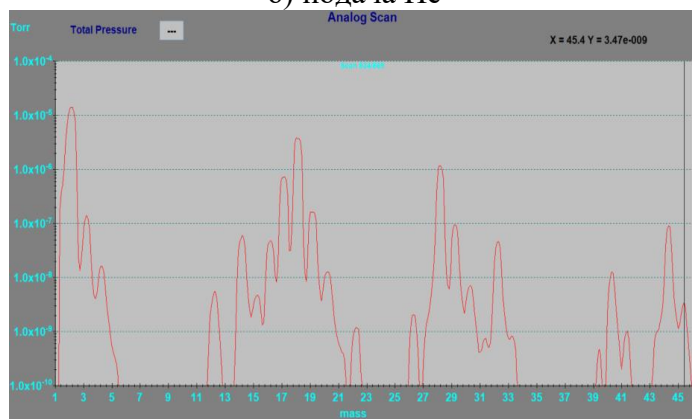
а) без подачи



б) подача He



в) подача D₂



г) подача H₂

Рисунок 19. Характерные спектры газа в установке на разной стадии экспериментов по калибровке

При подаче дейтерия в камеру на масс-спектре присутствует пик 4 массы, а также пики 3 массы (которая всегда присутствует в дейтерии, так как в дейтерии находится некоторое количество газа HD), 5 и 6 массы (которые хоть и незначительные по величине, но наличие их может влиять на интерпретацию результатов реакторных экспериментов при оценке выделения трития из материалов ТЯР).

Для экспериментов с подачей водорода наличие на масс-спектре 4 массы вызвано остатками дейтерия в системе подачи газов в установку.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в результате проделанных работ было получено, следующее:

- разработана и создана установка по регистрации газовыделения из материалов ЯР и ТЯР;

- разработана конструкция экспериментального облучательного устройства с учетом имеющихся экспериментальных возможностей реактора ВВР-К, опыта проведения внутриреакторных экспериментов и трендов развития ядерной и термоядерной энергетики;

- проведены нейтронно-физические и теплофизические расчеты, и с помощью которых были получены временные зависимости динамики нагрева и распределения температурных полей для облучательных ампул из нержавеющей стали, содержащих различные материалы бридеров ТЯР, которые показали, что с разработанной конструкцией ампулы облучение можно будет проводить при температурах 500-1200 °С;

- проведены вакуумные расчеты распределения давления в камере установки для различных геометрий вакуумного тракта и для различных потоков газовыделения материалов ТЯР. Результаты, которых показали, что разработанная установка может зарегистрировать поток трития и гелия в системе при уровне наработки трития и гелия в исследуемых образцах выше 10^{-11} моль/с;

- время наступления равновесного состояния составляет менее 1500 с;

- для сухого канала минимальная температура облучения для жидкометаллических бридерных систем будет меньше 723 К, что хорошо совпадает с задачами исследования поведения этих материалов в бридере ТЯР;

- как для сухого канала, так и для канала с водой минимальная температура исследования литиевой керамики (для всех типов ампул) достаточно высока и требует дополнительных мер по ее снижению;

- изготовлено разработанное реакторное ампульное устройство для испытания материалов ТЯР, с помощью которого проведены методические эксперименты по исследованию газовыделения;

- проведены вне реакторные методические эксперименты в ходе которых были определены коэффициенты калибровки, которые связывают потоки газов из области исследуемых образцов в установку с парциальными давлениями, регистрируемыми в области масс-спектрометра. Воспроизводимость экспериментов высокая, поэтому можно сделать вывод, что определенные коэффициенты калибровки являются достоверными.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- 1 Тажибаева, И.Л. Процессы переноса водорода в конструкционных материалах в поле ионизирующего излучения: (автореферат дис. доктора физико-математических наук: 01.04.07.). - Алматы, 1997.- 47 с.: ил.
- 2 Кульсартов, Т.В. Методика и аппаратное обеспечение проведения длительных реакторных экспериментов по исследованию выделения трития из материалов твердотельных бланкетов ТЯР (автореф.дис. канд. физ.-мат. наук: 01.04.01: защищена 24.04.10: утв. 04.05.10).— Алматы, 2010.— 119 с.
- 3 K. Lemmens, E. González-Robles, B. Kienzler, E. Curti, D. Serrano-Purroy, R. Sureda, A. Martínez-Torrents, O. Roth, E. Slonszki, T. Mennecart, I. Günther-Leopold, Z. Hózer. Instant release of fission products in leaching experiments with high burn-up nuclear fuels in the framework of the Euratom project FIRST- Nuclides, [Journal of Nuclear Materials, Volume 484](#), February 2017, P. 307-323.
- 4 Douglas E.Burkes, Amanda J.Casella, Andrew M.Casella. Measurement of fission gas release from irradiated U-Mo dispersion fuel samples, [Journal of Nuclear Materials, Volume 478](#), September 2016, P. 365-374.
- 5 Jeffrey J. Einerson, Binh T. Pham, Dawn M. Scates, John T. Maki, David A. Petti. Analysis of fission gas release-to-birth ratio data from the AGR irradiations, Nuclear Engineering and Design, Volume 306, September 2016, P. 14-23.
- 6 Vladimir Chakin, Rolf Rolli, Pavel Vladimirov, Anton Moeslang. Tritium and helium release from beryllium pebbles neutron-irradiated up to 230 appm tritium and 3000 appm helium, Nuclear Materials and Energy, Volume 9, December 2016, P. 207-215.
- 7 Matthias H. H. Kolb, Rolf Rolli, Regina Knitter. Tritium adsorption/release behaviour of advanced EU breeder pebbles, Journal of Nuclear Materials, Volume 489, June 2017, P. 229-235.
- 8 Guangming Ran, Chengjian Xiao, Xiaojun Chen, Yu Gong, Chunmei Kang, Xiaolin Wang. Correlation between the processes of water desorption and tritium release from Li₄SiO₄ ceramic pebbles, Journal of Nuclear Materials, Volume 466, November 2015, P. 316-321.
- 9 Kentaro Ochiai, Yuki Edao, Yoshinori Kawamura, Tsuyoshi Hoshino, Masayuki Ohta, Satoshi Sato, Chikara Konno. Experimental investigation on tritium release from lithium titanate pebble under high temperature of 1073 K, Fusion Engineering and Design, Volumes 98-99, October 2015, P. 1843-1846.
- 10 S.van Til, A.J. Magielsen, M.P. Stijkel, H.L. Cobussen. Out of pile tritium release behaviour and microscopic investigation of lithium metatitanate irradiated in the High Flux Reactor in Petten, Fusion Engineering and Design, Volume 85, Issues 7-9, December 2010, P. 1143-1146.
- 11 COMSOL Multiphysics® www.comsol.com. COMSOL AB, Stockholm, Sweden.
- 12 Celestini F.. “Cosine Law at the Atomic Scale: Toward Realistic Simulations of Knudsen Diffusion”/ Mortessagne F.// Phys. Rev. E, vol. 77, 021202, 2008.
- 13 MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. - Los Alamos National Laboratory, LA-UR-03-1987, 2008.
- 14 X-5 Monte Carlo Team, MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 - Volume II: User’s Guide, Los Alamos National Laboratory report LA-CP-03-0245 (April 2003, revised 2/1/2008).
- 15 Chadwick M.B.. ENDF/B-VII.1: Nuclear Data for Science and Technology: Cross Sections, Covariances, Fission Product Yields and Decay Data /M. Herman, P. Obložinský, M.E. Dunn, Y. Danon, A.C. //Nucl. Data Sheets 112(2011)2887.
- 16 Чихрай Е.В., Аскербеков С.К., Шаймерденов А.А., Гизатулин Ш.Х., Аханов А.М., Кенжин Е.А., Кабулбек Е.Б. Теплофизические расчеты реакторной ампулы для

исследования газовой выделения из литийсодержащих материалов при проведении экспериментов на реакторе ВВР-К // Вестник НЯЦ РК, вып.1 (77), 2019, с.52-59.