

3 ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА	1
3.1 ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ АППАРАТУРА	1
3.1.1 Основные особенности используемой аппаратуры и методики эксперимента	1
3.1.2. Диффузионная ячейка для реакторных экспериментов	3
3.1.3 Система управления температурой – гелиевая петля	4
3.1.4 Система отбора и измерения трития	5
3.1.5 Автоматизированная система управления аппаратурой	6
3.2 МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ РЕАКТОРНЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ	7

3 ТЕХНИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

3.1 ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ АППАРАТУРА

Эксперимент по облучению литиевой керамики был проведён на реакторе ВВР-К (Казахстанский водо-водяной реактор бассейнового типа), принадлежащий Институту ядерной физики НЯЦ РК в течение 220 суток (5350 час) на мощности 6 МВт в . При этом было достигнуто очень высокое (20%) выгорание по изотопу ${}^6\text{Li}$ [92, 97].

Облучение образцов проводили в экспериментальном канале реактора. Продолжительность отдельного цикла облучения ограничена временем кампании реактора и составляет не более 15 суток.

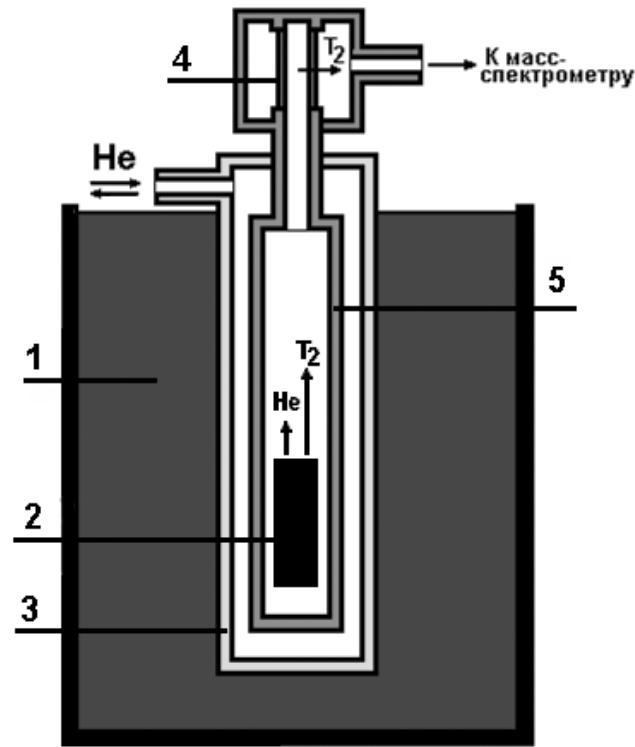
3.1.1 Основные особенности используемой аппаратуры и методики эксперимента

Экспериментальная аппаратура состояла из диффузионной ячейки с образцом, размещённой в исследовательском канале ВВР-К; системы управления и измерения температуры образца с помощью универсального петлевого устройства (УПУ); системы отбора и очистки трития, выделяющегося из образца в ходе облучения; масс-спектрометра для регистрации трития; вакуумной системы, для поддержания в датчике масс-спектрометра низкого давления; системы технологического контроля содержания трития в сбросных ёмкостях; и автоматизированной системы для управления экспериментом и регистрации полученных данных [92].

Упрощенная схема извлечения трития из диффузионной ячейки и очистки на палладиевом фильтре представлена на рисунке 33 [91].

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 температур 20°C - 900°C. Температуру контролировали пятью термопарами, размещёнными в термостатирующей оболочке, на корпусе диффузионной ячейки и на тепловом экране. Центральным элементом водородного фильтра являлась трубка из сплава PdAg состава 60:40 диаметром 2 мм и толщиной 0,1 мм, нагретая до температуры 400°C. Предварительные эксперименты показали, что фильтр обладает малой инерционностью и высокой эффективностью с точки зрения извлечения трития из диффузионной ячейки. При этом он является надёжным барьером для паров воды и для гелия (образующийся

одновременно с тритием гелий мешает определению НТ масс-спектрометром, поскольку их молекулярные веса ($M=4$) одинаковы) [96].



1 – активная зона ядерного реактора, 2 – образец, 3 – система терморегулирования, 4 – палладиевый фильтр, 5 – ампула с образцом

Рисунок 33 - Схема поступления трития в систему регистрации

Детектором трития и протия служил масс-спектрометр типа ИПДО-1 с омегатронным датчиком РМО-13. Высокий вакуум (до 10^{-8} торр) на выходе из фильтра и датчике масс-спектрометра поддерживали системой безмасляной откачки на базе насоса НОРД-250 и измеряли вакуумметрами. Функции выбора типа измерений, представления оперативной информации, управление длительностью и частотой измерений и регистрации данных реализованы на базе графического компьютерного терминала ПЭВМ IBM PC.

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 [95].

Методика эксперимента заключалась в следующем. Диффузионную ячейку помещали в исследовательский канал в активной зоне реактора ВВР-К, включали реактор, обеспечивая облучение образца нейтронами (в основном – тепловыми) и гамма-излучением, и устанавливали заданный температурный режим. В работе использовали две ампулы с одинаковыми образцами, но с различным температурным режимом: в ампуле А1 образец подвергался термоциклированию, тогда как в ампуле А2 температура оставалась постоянной ($640 \pm 20^\circ\text{C}$) в течение всего эксперимента. Образец непрерывно облучали в течение кампании реактора различной длительности (12- 23 дней); в ходе перерывов между кампаниями (необходимыми для перегрузки топлива), ампула с образцом оставалась в реакторе. Общее время облучения составило 220 суток. Под действием реакторного облучения в образце происходит ядерная реакция тепловых нейтронов с ядрами ${}^6\text{Li}$, в результате которой образуются тритий и гелий. Эти газы (а так же некоторое количество паров воды, меченой тритием) выделяются из образца (как за счёт эффекта отдачи, так и путём диффузии),

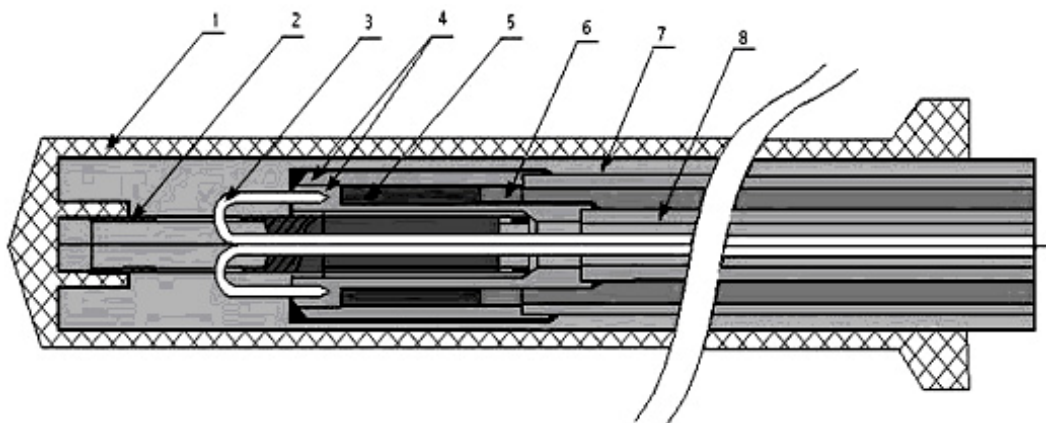
заполняют объём ампулы и за счёт быстрой диффузии поступают на вход фильтра. Сквозь фильтр проходит только тритий. Он по линии вакуумной откачки попадал на масс-спектрометрический датчик. Масс-спектрометр контролировал состав газа в измерительной камере, но в основном использовался для непрерывной регистрации изменения концентрации трития на выходе из палладиевого фильтра. Компьютерная система записывала температуру образца и активность трития (получаемую пересчётом суммы масс 6 (T_2) и 4 (HT)) [98, 105].

Остановимся на некоторых важных узлах установки несколько подробнее.

3.1.2. Диффузионная ячейка для реакторных экспериментов

Гранулы помещали в специально разработанную диффузионную ячейку ампульного устройства с газовой (гелиевой) системой регулировки температуры образцов. Конструкция (см. рисунок 34) [91] обеспечивала возможность поддержания любой температуры (и любого режима нагрев-охлаждение, в том числе – термоциклирование) в интервале от 20°C до 900°C. При этом имелась возможность осуществлять непрерывный процесс измерения потока выделяющихся газов с массовыми числами от водорода до трития (в качестве детектора использовался масс-спектрометр). Разработанная конструкция, предусматривающая разделение тракта охлаждения и измерительного тракта, позволяет осуществлять прямые измерения потоков трития в высоком вакууме.

Предварительные расчеты показали, что для достижения больших степеней выгорания лития-6 ячейка должна иметь плоскую геометрию. Конструкция, размеры контейнера с образцами и схема размещения термопар приведены на рисунке 34. Контейнер для размещения образцов представляет собой ёмкость прямоугольного сечения, изготовленную из листа нержавеющей стали толщиной 0,3 мм. Образцы общим весом 2 г засыпаются в контейнер. Контейнер закреплен в тепловом экране из нержавеющей трубки $\varnothing 13 \times 0,5$ мм, на внутренней боковой поверхности которого по всей длине экрана с помощью аргоно-дуговой сварки закреплены четыре ребра толщиной 0,6 мм, необходимые для улучшения теплопередачи.



1 – корпус диффузионной ячейки, 2 – рассекающий газовый поток, 3 – термопары, 4 – корпус контейнера с образцами, 5 – образцы литиевой керамики, 6 – вакуумная полость ячейки с выходом на масс-спектрометр, 7 – газовая полость ячейки, 8 – трубка подачи газа охлаждения.

Рисунок 34 - Схема конструкции диффузионной ячейки с газовой системой регулировки температуры исследуемых образцов

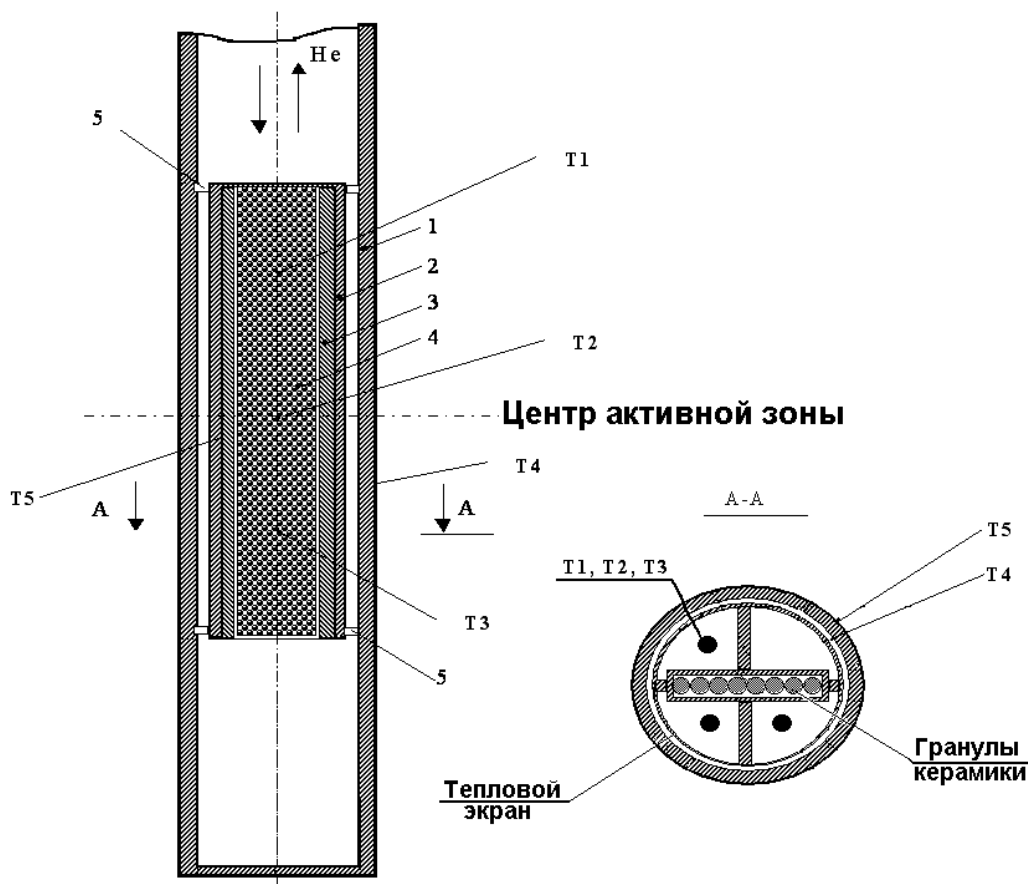
Тепловой экран с контейнером располагается соосно корпусу ампулы и имеет кольцевой зазор с корпусом величиной 0,5 мм, который обеспечивается керамическими

вставками. Корпус ампулы представляет собой трубку $\varnothing 16 \times 1$ мм, которая размещается в чехле водяного охлаждения (рисунок 35) [96].

Внешний вид диффузионной ячейки с образцами и ампульная сборка, предназначенная для длительного исследования процессов генерации и выделения трития при радиационном и термическом воздействии на керамику из обогащенного титаната лития, приведены на рисунке 36 [96].

3.1.3 Система управления температурой – гелиевая петля

Система регулировки температуры образцов основана на использовании зависимости теплопроводности гелия от давления. В ампуле создается гелиевая среда в интервале давлений от 10^{-1} Па до 10^5 Па. При давлении 10^{-1} Па (вакуум) теплопроводностью гелия можно пренебречь и учитывать только теплообмен излучением. Далее, при увеличении давления до 10^2 Па и выше, начинается существенный вклад теплопроводности гелия и осуществляется регулирование температуры образцов за счет изменения давления гелия.



1 – корпус ампульного устройства, 2 – тепловой экран, 3 – ребра теплопередачи, 4 – контейнер с образцами, 5 – керамические вставки, T1, T2, T3 – термопары на контейнере с образцами, T4 – термопара на корпусе ампулы, T5 – термопара на тепловом экране.

Рисунок 35 - Схема конструкции контейнера с образцами в ампуле

Для реализации этой идеи была создана система подачи и откачки гелия в облучаемое ампульное устройство – гелиевая петля. Гелиевая петля позволяла плавно напускать и откачивать, а также поддерживать давление гелия в интервале от 10^{-1} до 10^5 Па в ампульном устройстве.

В ходе эксперимента температуру в ампуле поддерживали, изменяя давление гелия над образцом. При этом использовали калибровочный график, приведенный на рисунке 37 [91, 92, 96]: чем выше давление гелия, тем ниже температура образца. Использовали два

термических режима: ступенчатый нагрев, иначе называемый изохронным отжигом (ампула А1) и изотермический (ампула А2) нагрев.



Рисунок 36 - Диффузионная ячейка и ампульная сборка длительного облучения образцов литиевой керамики

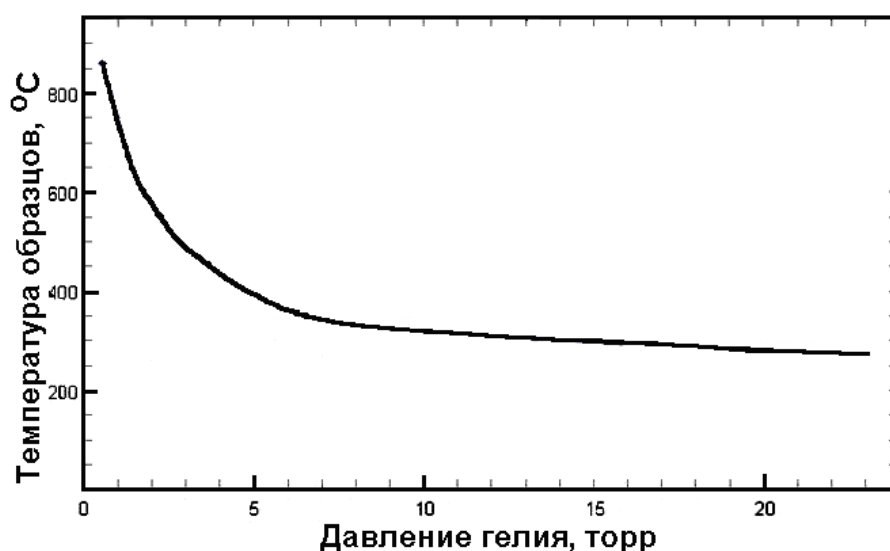


Рисунок 37 - Зависимость температуры образца от давления гелия в ампульном устройстве

3.1.4 Система отбора и измерения трития

Для отбора трития из смеси газов, содержащихся в ампульном устройстве и его регистрации, разработано устройство на базе водородного фильтра из сплава PdAg (60/40%), обеспечивающее условия высокого вакуума и позволяющее применить масс-спектрометрический способ измерения приведен на рисунке 38. Устройство представляет собой тонкостенную трубку $\varnothing 2 \times 0,1$ мм, по которой прокачивается смесь газов из ампулы, при этом с наружной стороны трубки производится отбор проникающего сквозь трубку трития и по линии вакуумной откачки тритий попадает на масс-спектрометрический датчик (омегатрон – датчик масс-спектрометра типа ИПДО-1). Для обеспечения высокой эффективности процесса отбора трития трубка фильтра прогревается до температуры 500°C. На входе фильтра давление составляло 10^{-3} торр, на выходе - 10^{-8} торр.

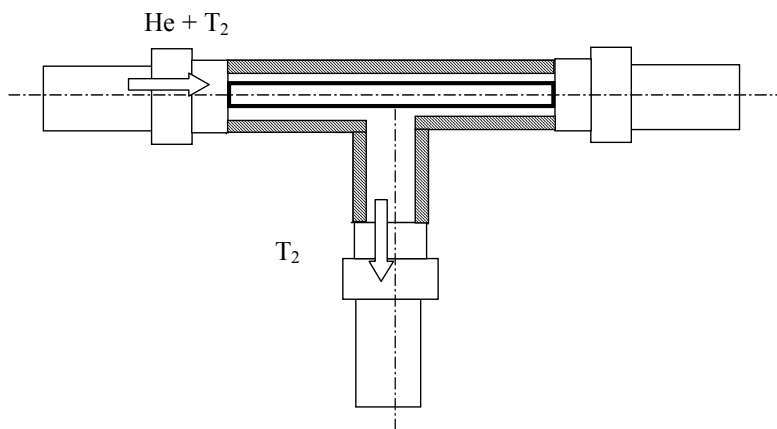


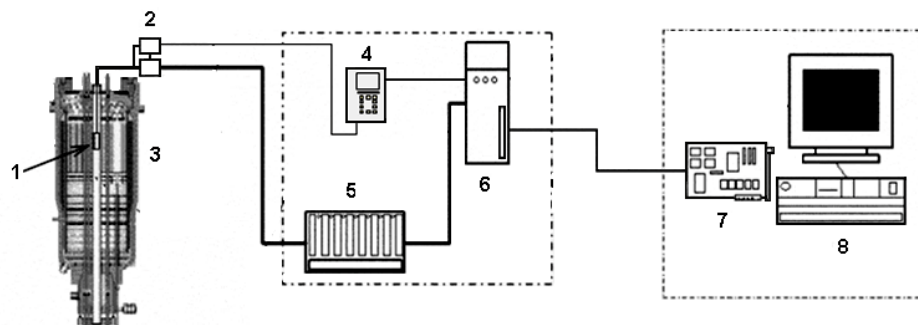
Рисунок 38 – Схема палладиевого фильтра для отбора трития из гелиевой петли

3.1.5 Автоматизированная система управления аппаратурой

Для выполнения исследований была разработана система автоматизации измерения выхода трития для трех активных ампул, ориентированная на использование персонального компьютера типа IBM PC. Для этого был разработан, изготовлен и опробован вариант управляемого от PC синтезатора рабочей частоты масс-спектрометров (PUG). Изготовлено также три комплекта аппаратуры (блок питания омегатрона + электрометрическая головка) для соответственно трех масс-спектрометров. Разработана и отлажена программа регистрации измерений MsPUG.exe, работающая в среде Win95-WinXP. В системе измерения трития используется локальная сеть из двух компьютеров в режиме удаленного управления (расстояние ~60 м). Блок-схема измерительной системы приведена на рисунке 39 [98, 105]. Компьютер-сервер, на котором запущена программа измерений MsPUG, через заданный интервал времени производит сканирование масс-спектра с нужного спектрометра, определяет концентрации заданных газов, отражает измеренный спектр и временные зависимости концентраций в графическом и текстовом виде на дисплее и записывает весь массив данных в файл. Система позволяет регистрировать масс-спектры с интервалом от 2 минут и выше на протяжении двух недель непрерывной работы.

Система автоматизации установки позволяет производить автоматизированный сбор, регистрацию в реальном времени и анализ измерений, получаемых в рабочей камере установки в объеме до 5000 экспериментальных точек измерения.

Вакуумная система состоит из насосов НОРД-100, НОРД-250 и позволяет получать вакуум 10^{-7} Па. Система напуска, состоит из второго палладий-серебряного фильтра, позволяющего получать во входной камере водород спектральной чистоты (объемная доля примесей в очищенном водороде менее $1 \cdot 10^{-4}\%$). Измерение давления производится двумя вакуумметрами деформационным газоразрядным вакуумметром ВДГ-1 и ионизационным вакуумметром ИКД-50. В измерительной камере расположен масс-спектрометр и насос НОРД-250. Также во всех камерах расположены манометрические лампы ПМТ-2, которые используются для оценки получаемого вакуума при монтаже и предварительной откачки установки.



1 - ампула с образцом, 2 – масс-спектрометр, 3 - атомный реактор,
 4 – вольтметр, 5 – программно-управляемый генератор, 6 – сервер;
 7 – адаптер, 8 – компьютер.

Рисунок 39 - Блок схема системы измерения выхода трития

Установка обеспечивает возможность измерения как развернутого масс-спектра в измерительном блоке установки, так и регистрацию динамики изменения концентрации до трех масс (газов) одновременно, а также работу в режиме измерения и послепусковой обработки данных. Функции выбора типа измерений, представления оперативной информации, управление длительностью и частотой измерений и регистрации данных реализованы на базе графического компьютерного терминала ПЭВМ IBM PC.

Выделяющийся тритий из ампулы через палладий-серебряный фильтр попадал в измерительную систему, где проводилась масс-спектрометрическая регистрация состава газа измерительной камеры. Типичный масс-спектр приведен на рисунке 40. Точность регистрации изотопов водорода масс-спектрометром 10%, надёжность регистрации температуры образца $\pm 15^\circ\text{C}$.

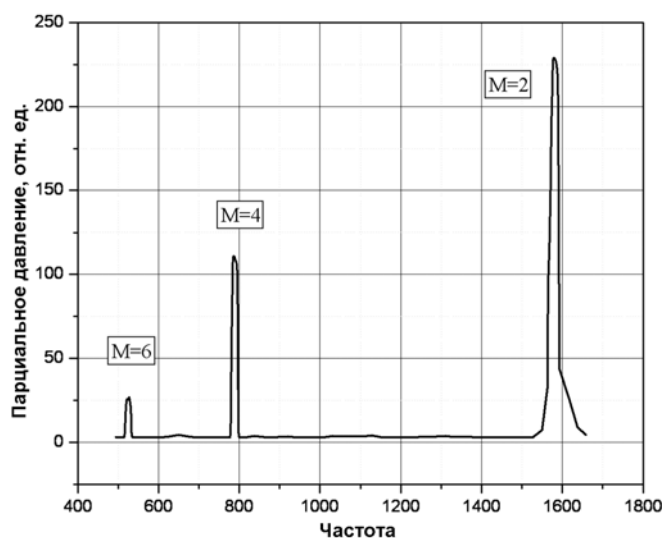


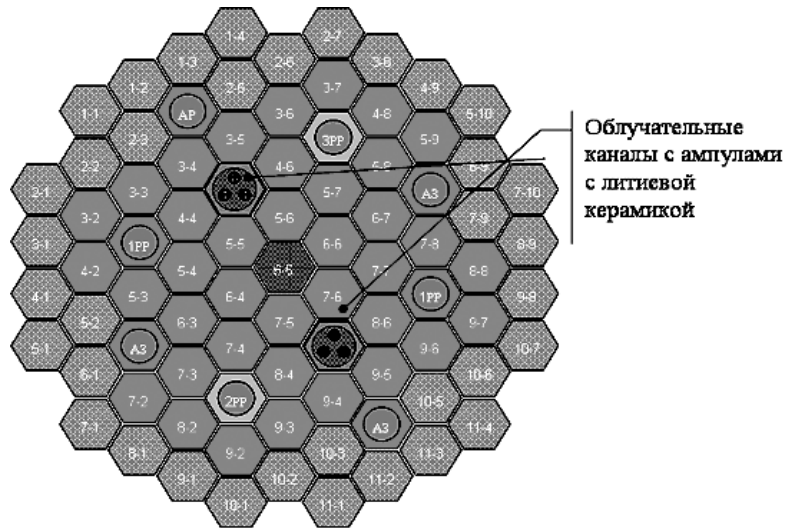
Рисунок 40 - Типичный вид масс-спектра в измерительной камере

Установка обеспечивала: облучение тепловыми нейтронами образца, поддержание постоянной температуры образца в ходе эксперимента (при необходимости – изменение температуры образца по заданной программе), измерение температуры, снятие масс-спектров продуктов выделения и регистрацию потока трития, выделяющегося из образца.

3.2 МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ РЕАКТОРНЫХ ЭКСПЕРИМЕНТОВ

Гранулы керамики засыпали в ампулы по 2 г (однослойная плотная шаровая упаковка). Для измерения выделения трития использовались 2 ампулы (маркировка А1 и А2) помещенные во внутриреакторное ампульное устройство. Ампулы помещали в камеры универсальной петлевой установки реактора ВВР-К и облучали заданное время тепловыми нейтронами и сопутствующим γ -излучением.

Расположение ампул с литиевой керамикой в активной зоне реактора показано на рисунках 41 и 42 [91, 96, 105].



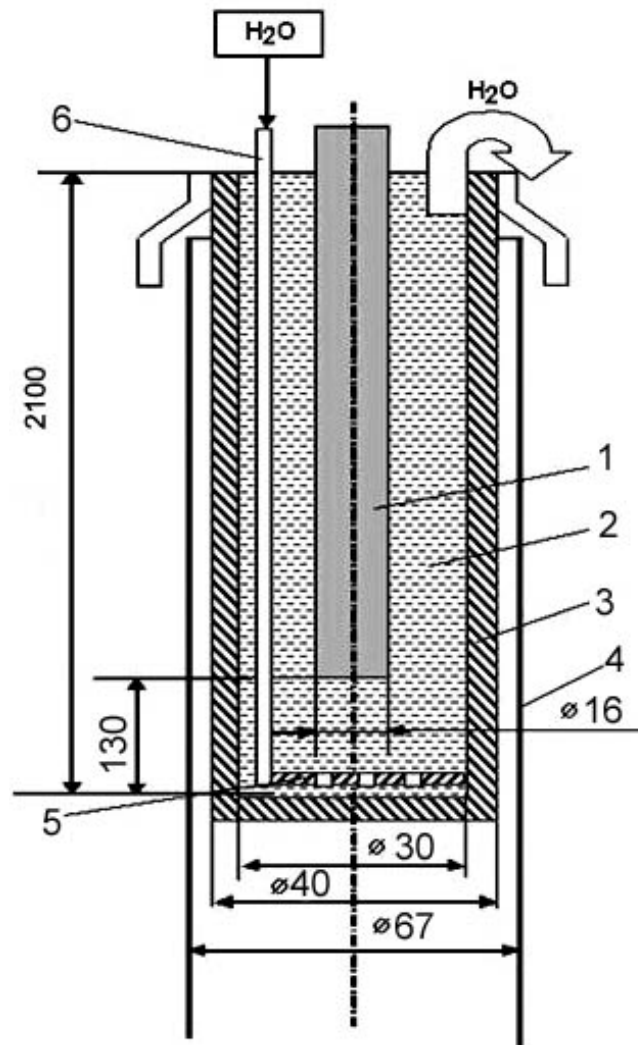
А - тепловыделяющие сборки, РР – органы системы управления защиты.

Рисунок 41 - Расположение ампул с литиевой керамикой в активной зоне реактора ВВР-К

Испытания образца в ампуле А1 проводили в ходе последовательных кампаний различной длительности. Температурные режимы в разных испытательных циклах в пределах кампании тоже были различными. Эксперименты проводили следующим образом: в некоторый момент резко изменяли температуру (либо повышали, либо уменьшали) после чего образец охлаждался (почти линейно) в течение одних-двух суток до некоторой температуры. Затем температуру образца опять резко изменяли и позволяли охладиться, и т.д. Интервал исследованных температур составил 500-900°С.

В капсуле А2 температура в ходе реакторного облучения поддерживалась на уровне 640°С на протяжении всего периода облучения (средняя температура $\pm 20^\circ$ поддерживалась в «макросмысле», в «микросмысле» нагрев был циклическим – происходило чередование участков линейного нагрева и охлаждения).

Образовавшийся при взаимодействии тепловых нейтронов с ${}^6\text{Li}$ тритий выделялся из литиевой керамики в межгранульное пространство и путём диффузии в разреженной атмосфере поступал на палладиево-серебряный фильтр. На фильтре происходило разделение гелий-тритиевой смеси, тритий проходил сквозь нагретый фильтр и подавался на детектор масс-спектрометра. Установка одновременно и автоматически регистрировала парциальное давление трития (суммарную массу T_2 и НТ, т.е. 4 и 6 массы) и температуру образца. Данные поступали на компьютер, с помощью которого строили зависимости потока трития из образца от времени (а при необходимости – и от температуры).



1 – ампула, 2 – вода, 3 – чехол водяного охлаждения, 4 – корпус, 5 – решетка для распределения воды, 6 – трубка ($\text{Ø}6 \times 1 \text{ мм}$) подачи воды охлаждения.

Рисунок 42 - Схема расположения диффузионной ячейки с образцами в реакторе ВВР-К

Работу проводили в соответствии с экспериментальной матрицей (таблица 10).

Таблица 10 - Экспериментальная матрица

Серия	Состав керамики	Геометрия керамики	Температурный режим, °С
A1	Обогащенный по ${}^6\text{Li}$: Li_2TiO_3	гранулы	400-900
A2	Обогащенный по ${}^6\text{Li}$: $\text{Li}_2\text{TiO}_3 + 5 \text{ мол\% TiO}_2$	гранулы	650

Условия проведения эксперимента по длительному реакторному облучению:

- Время облучения - 5350 часов.
- Мощность реактора – 6 МВт
- Место облучения – ячейки 4-5 и 8-5 активной зоны.

- Количество ампул с литиевой керамикой – 6.
 - Общее количество керамики – 16,2 грамма
 - Глубина выгорания лития:
 - в шариках ампул активного типа – 23%;
 - в шариках ампул пассивного типа – 20%;
 - в таблетках – 18%.
 - Удельное тепловыделения в керамике - $100-130 \text{ Вт}\cdot\text{г}^{-1}$.
- Эффект реактивности от установки двух ампульных сборок в активную зону реактора ВВР-К – минус 1,2 % $\Delta\text{К}/\text{К}$.

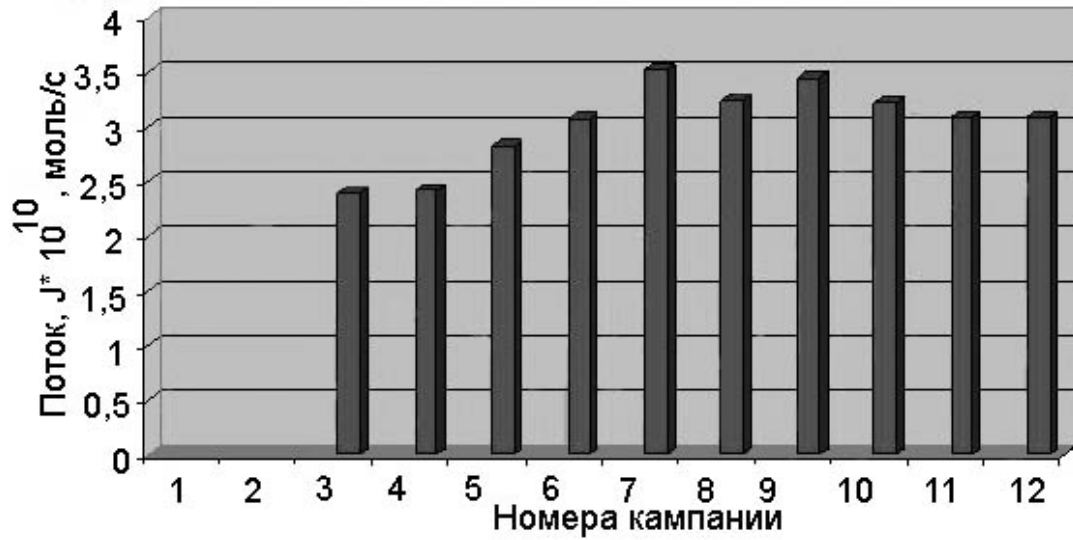


Рисунок 43 - Диаграмма потоков выделившегося трития из образцов литиевой керамики за кампанию А2

По мере увеличения времени облучения в реакторе, скорость генерации трития падает, из-за выгорания лития-6 (рисунок 44) [98].

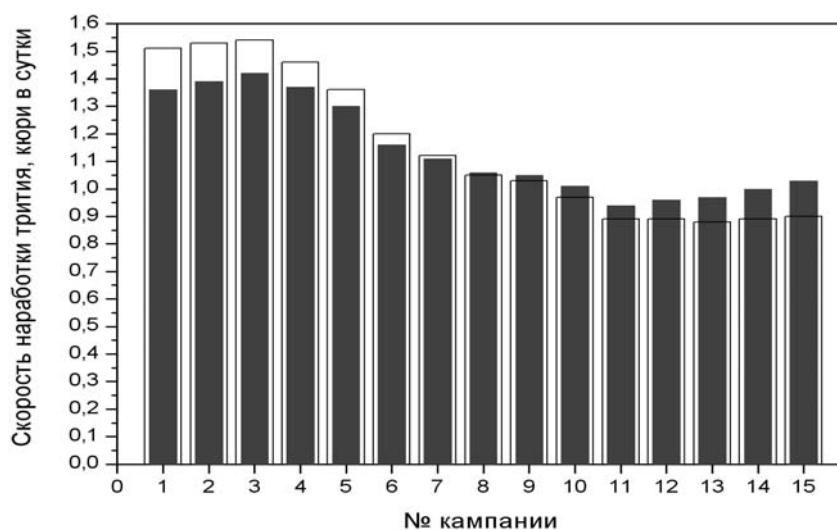


Рисунок 44 - Нароботка трития в последовательных кампаниях ядерного реактора (контур – теоретический расчет с помощью программы Монте Карло (MCNP), заштрихованные области – эксперимент)

Примечание. Расчет генерации трития проводился с использованием кода MCNP (Monte Carlo N – Particle transport code)

$$R = N * \int_0^{20\text{MeV}} \varphi(E) * \sigma_E * dE$$

$\varphi(E)$ – поток нейтронов;

N – плотность атомов ${}^6\text{Li}$;

σ_E – сечение реакции ${}^6\text{Li}(n,T){}^4\text{He}$;