

УДК 621.039.553: 539.219.3

ПРИМЕНЕНИЕ МЕТОДА ВОДОРОДОПРОНИЦАЕМОСТИ В РЕАКТОРНЫХ ЭКСПЕРИМЕНТАХ ПО ИССЛЕДОВАНИЮ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ИЗОТОПОВ ВОДОРОДА С КОНСТРУКЦИОННЫМИ МАТЕРИАЛАМИ

Гордиенко Юрий Николаевич,

аспирант Физико-технического института Томского политехнического университета,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, д. 30; начальник группы лаборатории внутриканальных испытаний
Республиканского государственного предприятия на правах хозяйственного ведения
«Национальный ядерный центр Республики Казахстан», филиал «Института атомной энергии»,
Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, д. 10. E-mail: Gordienko@nnc.kz

Кульсартов Тимур Валиханович,

канд. физ.-мат. наук, ведущ. науч. сотр. лаборатории внутриканальных испытаний
Республиканского государственного предприятия на праве хозяйственного ведения
«Национальный ядерный центр Республики Казахстан», филиал «Институт атомной энергии»,
Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, д. 10. E-mail: Kulsartov@nnc.kz

Заурбекова Жанна Асхатовна,

мл. науч. сотр. лаборатории внутриканальных испытаний Республиканского государственного предприятия
на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», филиал «Институт
атомной энергии», Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, д. 10. E-mail: Zaurbekova@nnc.kz

Понкратов Юрий Валентинович,

науч. сотр. лаборатории внутриканальных испытаний Республиканского государственного предприятия
на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», филиал «Институт
атомной энергии», Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, д. 10. E-mail: Ponkranov@nnc.kz

Гныря Вячеслав Сергеевич,

начальник КИР «Байкал-1», гл. инженер КИР Республиканского государственного предприятия
на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», филиал
«Институт атомной энергии», Казахстан, 071100, г. Курчатов, ул. Красноармейская, д. 10. E-mail: slava@nnc.kz

Никитенков Николай Николаевич,

д-р физ.-мат. наук, профессор каф. общей физики Физико-технического института
Томского политехнического университета, Россия, 634034, г. Томск, пр. Ленина, 30. E-mail: nikitenkov@tpu.ru

Актуальность работы обусловлена необходимостью создания методической и аппаратной базы для проведения исследований взаимодействия изотопов водорода с различными материалами в условиях реакторного облучения.

Цель работы: разработка и испытание методики по определению параметров взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами в условиях реакторного облучения; проведение расчетных оценок и экспериментов, подтверждающих возможность использования методики.

Методы исследования: использовались теплофизические, нейтронно-физические методы расчета ампульных устройств, метод водородопроницаемости.

Результаты: приведены основные положения методики проведения реакторных исследований материалов методом водородопроницаемости; оценки применимости данной методики и результаты ее использования при проведении реакторных экспериментов с конструкционными материалами, такими как сталь SS316L (N)-IG, ванадиевый сплав V4Cr4Ti и медная бронза CuCrZr.

Ключевые слова:

Метод водородопроницаемости, водород, изотопы водорода, реакторное облучение, коэффициент диффузии, константа проницаемости, константа растворимости.

Введение

Традиционный интерес к системам металл-водород связан с техническими приложениями в области атомной энергетики, порошковой металлургии, ракетостроения, электровакуумной промышленности, водородной энергетики, защиты

оборудования и конструкций от водородной коррозии.

Диффузионный перенос водорода в материалах под действием внешних факторов (конструктивно-технологических и эксплуатационных) может оказывать существенное и преимущественно отрица-

тельное влияние на физико-механические и прочностные свойства металлов и сплавов, снижая работоспособность различных узлов конструкции. Это вызвано тем, что водород, проникающий в металл во время плавки, разливки и различных химических, электрохимических, газоразрядных и ядерных процессов, диффундируя в кристаллической решетке, способен взаимодействовать с различного рода дефектами, содержащимися в реальных материалах. Накопление водорода в дефектах материала способствует быстрому разрушению изделий, контактирующих с водородом, в результате водородного набухания материала [1, 2].

Наиболее существенное влияние на механические свойства материала водород оказывает в атомной и термоядерной энергетике, где изотопы водорода являются продуктами ядерных реакций (атомная энергетика) или непосредственно участвуют в процессе производства энергии – термоядерный синтез. Проблема усложняется тем, что материалы используются в элементах конструкций, работающих в нейтронных радиационных полях. Наличие этих полей приводит к многочисленным ядерным реакциям в материале, в том числе с легирующими элементами и примесями, наработке водорода и его изотопов (дейтерия и трития) в материале, а также вызывает радиационные изменения структуры и фазового состава материала. Комплексное воздействие факторов эксплуатации на конструкционные материалы инициирует сложный процесс изменения свойств материалов, который может привести к внезапному их разрушению. Отдельной важной задачей является оценка тритиевой безопасности ЯР и особенно ТЯР. Утечки трития сквозь конструкционные материалы ТЯР определяют безопасность использования таких установок в будущем.

В связи со сказанным является актуальным исследование параметров взаимодействия изотопов водорода с функциональными и конструкционными материалами в условиях комплексного воздействия факторов эксплуатации (температуры, изотопов водорода, нейтронного облучения и др.).

Отсутствие экспериментальных данных по влиянию реакторного облучения на процессы взаимодействия изотопов водорода с материалами ставит задачу разработки методики реакторных исследований и применение ее для определения параметров взаимодействия изотопов водорода с материалами.

Данная задача включает в себя создание методической и аппаратной базы для обеспечения реакторных исследований и проведение расчетных оценок и методических экспериментов, подтверждающих возможность использования предложенной методики в реакторных экспериментах.

В Институте Атомной Энергии Национального Ядерного Центра РК на реакторе ИВГ.1М (г. Курчатов) на протяжении нескольких лет различными методами ведутся реакторные исследования процессов взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами. Одним из методов

исследований является метод водородной проницаемости (ВП) материалов.

В данной работе приведена методика проведения реакторных исследований конструкционных материалов методом ВП, оценки применимости данной методики и результаты ее использования при проведении реакторных экспериментов с конструкционными материалами: нержавеющая сталь SS316L (N)-IG, ванадиевый сплав V4Cr4Ti и медная бронза CuCrZr.

Метод определения водородной проницаемости

Экспериментальные методы исследования параметров массопереноса в металлах в настоящее время хорошо разработаны и состоят в основном из различных вариаций явлений газопроницаемости и десорбции.

Метод проницаемости имеет существенное преимущество по сравнению с другими методами, используемыми при исследованиях взаимодействия изотопов водорода с материалами. Это преимущество заключается в возможности измерения в одном эксперименте коэффициента диффузии, констант растворимости и проницаемости. Подробное описание метода водородопроницаемости представлено в ОСТе 92–4949–84 [3].

Для проведения исследований методом водородопроницаемости обычно используется диффузионная ячейка, разделенная мембраной из исследуемого материала на две камеры: входную и выходную.

В статье описывается возможность применения динамического варианта метода водородопроницаемости в реакторных экспериментах по исследованию взаимодействия водорода и его изотопов с конструкционными материалами. Суть метода кратко заключается в следующем: после подготовки образца (отжига) и вакуумирования объемов, прилегающих к входной и выходной сторонам мембраны, при исследуемой температуре подается газ на входную сторону образца. При этом в выходном объеме с помощью масс-спектрометрической регистрации измеряется количество газа, прошедшего сквозь образец. При таком варианте метода водородопроницаемости нахождение параметров процесса проникновения исследуемого газа сводится к решению уравнения Фика со следующими граничными условиями первого рода [4]:

$$J = -D \frac{\partial C}{\partial x},$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2},$$

$$C|_{t=0} = 0, \quad 0 \leq X \leq l,$$

$$C|_{t \geq 0} = S_H \sqrt{P_0}, \quad X = 0,$$

$$C|_{t \geq 0} = 0, \quad X = l.$$

В этом случае полагают, что в момент подачи водорода на входной стороне образца мгновенно устанавливается концентрация, равная равновесной растворимости, а концентрация водорода на

выходной стороне мембраны в любой момент времени остается равной нулю.

В соответствии с первым законом Фика поток водорода сквозь мембрану единичной площади запишется следующим образом [5]:

$$J = \frac{DS_H}{l} \left\{ 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left[\cos\left(\frac{\pi n}{l} x\right) \exp\left(-\frac{D\pi^2 n^2}{l^2} t\right) \right] \right\}.$$

Для потока на выходной стороне мембраны имеем следующее выражение

$$J_{\text{вых}} = \frac{DS_H}{l} \left\{ 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \left[(-1)^n \exp\left(-\frac{D\pi^2 n^2}{l^2} t\right) \right] \right\}.$$

При достаточно больших значениях t для величины стационарного потока, из которого может быть рассчитана константа проницаемости, получается выражение:

$$J_{\text{ст}} = J(t, l) \Big|_{t \rightarrow \infty} = \frac{DS_H}{l}.$$

Анализ формы зависимости $J(t)$ (рис. 1) позволяет выделить ряд характерных точек, связанных с коэффициентом диффузии: это время прорыва, или, как его еще называют, время запаздывания для нестационарного состояния t_n , которое определяется как точка пересечения касательной к кривой $J(t)$, проведенной через точку перегиба, с осью времени; время перегиба t_i – время, при котором вторая производная меняет знак; время полуволены $t_{0,5}$ – время, за которое поток достигает половины стационарного значения.

Любым из характеристических времен можно воспользоваться для определения коэффициента диффузии:

$$D = \frac{l^2}{19,9\tau_n} = \frac{l^2}{10,9\tau_i} = \frac{l^2}{7,2\tau_{0,5}} = \frac{l^2}{6\tau_s}.$$

Факт совпадения D , рассчитанных по различным характеристическим временам, может быть использован в качестве критерия однородности диффузионной среды и возможности описания экспериментальных условий с приведенными крайними условиями.

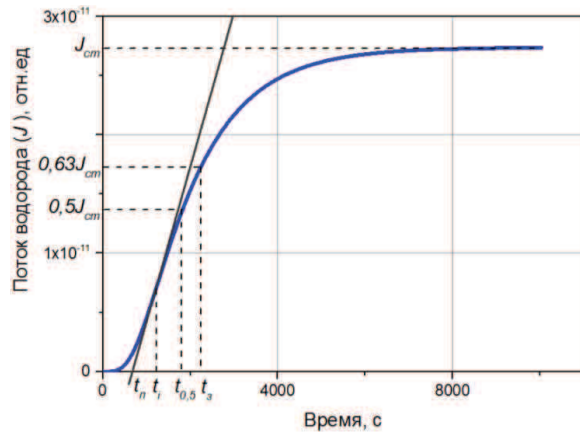


Рис. 1. Характерная кривая проницаемости водорода через металлическую мембрану

Более надежным и современным методом в определении коэффициента диффузии является метод спрямления кривой установления стационарного потока в функциональном масштабе [6, 7]. Использование метода линеаризации с применением функциональных масштабов, т. е. сведение сложной зависимости к линейной, позволяет значительно облегчить обработку результатов и сделать их более корректными. Метод линеаризации подробно описан в работе Л.Л. Кунина [8], а функциональные масштабы разработаны в работе [7, 9].

Константа проницаемости и растворимость водорода определяются выражениями [3]:

$$P_H = \frac{\Phi_H l}{S_3 \sqrt{P}},$$

$$S_H = \frac{P_H}{D_H},$$

где P_H – константы проницаемости водорода, моль/с·м·Па^{1/2}; Φ_H – поток водорода через образец, моль/с; l – толщина образца, м; S_3 – эффективная площадь образца, м²; P – давление газообразного водорода на входной стороне образца, Па; S_H – растворимость водорода моль/м³; D_H – коэффициент диффузии, м²/с.

Графически температурные значения водородопроницаемости, коэффициента диффузии и растворимости изображаются в координатах:

$$\lg(P_H, D, S_H) = f\left(\frac{10^3}{T}\right),$$

где T – температура исследуемого образца, К.

Энергию активации процессов диффузии и проникновения определяют как тангенс угла наклона политерм температурной оси и рассчитывают по формулам:

$$E_p = \frac{R}{\lg e} (\lg P_{H_1} - \lg P_{H_2}) \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2},$$

$$E_D = \frac{R}{\lg e} (\lg D_{H_1} - \lg D_{H_2}) \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2},$$

$$H_S = \frac{R}{\lg e} (\lg S_{H_1} - \lg S_{H_2}) \frac{T_1 T_2}{T_1 - T_2},$$

где P_{H_1}, P_{H_2} (D_{H_1}, D_{H_2} ; S_{H_1}, S_{H_2}) – значения, полученные при температурах образца T_1 и T_2 , соответственно, причем $T_1 > T_2$; R (газовая постоянная ($R=8,31431$ Дж/(моль·К))).

Постоянные диффузии P_0 , D_0 и S_0 рассчитывают по формулам:

$$\lg P_0 = \lg P_{H_1} + \frac{T_2}{T_1 - T_2} (\lg P_{H_1} - \lg P_{H_2}),$$

$$\lg D_0 = \lg D_{H_1} + \frac{T_2}{T_1 - T_2} (\lg D_{H_1} - \lg D_{H_2}),$$

$$\lg S_0 = \lg S_{H_1} + \frac{T_2}{T_1 - T_2} (\lg S_{H_1} - \lg S_{H_2}).$$

В Институте Атомной Энергии НЯЦ РК методом водородопроницаемости исследовались раз-

личные материалы [10–13]. Исследования процессов проницаемости изотопов водорода сквозь конструкционные материалы в условиях реакторного излучения проводились на экспериментальном стенде, размещённом в реакторном зале исследовательского реактора ИВГ.1М.

Реактор ИВГ.1М

Реактор ИВГ.1М – исследовательский водо-водяной гетерогенный корпусного типа ядерный реактор на тепловых нейтронах с легководными замедлителем и теплоносителем и бериллиевым отражателем нейтронов (рис. 2)

Технические параметры реактора ИВГ.1М следующие:

- тепловая мощность – 72 МВт;
- эффективный размер активной зоны – 548 мм;
- высота активной зоны – 800 мм;
- содержание урана-235 в активной зоне – 4,6 кг;
- плотность потока тепловых нейтронов в центре экспериментального канала – $3,5 \cdot 10^{14}$ н/см²·с.

В табл. 1 приведены значения потока нейтронов при мощности реактора 6 МВт.

Таблица 1. Поток нейтронов в центре активной зоны реактора ИВГ.1М при работе на мощности 6 МВт

Энергетическая группа	от 0 до 0,67 эВ	от 0,67 до 0,1·10 ⁶ эВ	от 0,1 до 10 МэВ	Интегральный поток
Нейтронный поток, см ⁻² ·с ⁻¹	$0,87 \cdot 10^{14}$	$0,42 \cdot 10^{14}$	$0,22 \cdot 10^{14}$	$1,5 \cdot 10^{14}$

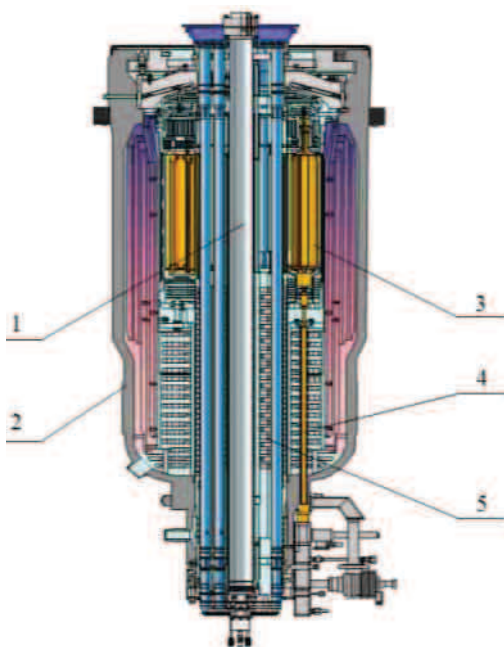


Рис. 2. Реактор ИВГ.1М: 1 – центральный канал; 2 – корпус реактора; 3 – регулирующий барабан (РБ); 4 – привод исполнительного механизма РБ, 5 – железобетонная защита

Активная зона реактора содержит 30 водоохлаждаемых технологических каналов, устано-

вленных в ячейках трех кольцевых рядов. В центральной части реактора расположен центральный петлевой канал с бериллиевым вытеснителем и корпусом физического экспериментального канала (ФКЭ).

Корпус ФКЭ используется в качестве канала для размещения облучаемого ампульного устройства (АУ).

Экспериментальный стенд

Реакторные исследования по взаимодействию изотопов водорода с конструкционными материалами проводились на экспериментальном стенде, который позволяет проводить эксперименты по водородопроницаемости различных конструкционных материалов при потоках тепловых нейтронов до 10^{14} н/см², температурах образца от 293 до 1573 К и входных давлениях водорода и его изотопов до 10 атм.

Экспериментальный стенд функционально состоит из вакуумной системы, системы очистки и напуска изотопов водорода и информационно-измерительной системы.

Вакуумная система экспериментального стенда (рис. 3) позволяет провести подготовку стенда к работе и создать необходимые условия для проведения экспериментов. Вакуумная система включает в себя экспериментальное АУ с исследуемым образцом, форвакуумную и высоковакуумную части, соединенные трубопроводами с запорной арматурой. Данная система оснащена вакуумным насосом (НВР-5ДМ) с азотной ловушкой и магниторазрядными насосами (НЭМ-300, НОРД-100 и НОРД-250). Насос НВР-5ДМ с азотной ловушкой служит для предварительной откачки всей системы и обеспечивает минимальное давление для начала работы высоковакуумных магниторазрядных насосов. Насосы НЭМ-300, НОРД-100 и НОРД-250 создают необходимые условия (давление) в объеме ампульного устройства, измерительного тракта и в системе напуска изотопов водорода.

Система очистки и напуска экспериментального стенда обеспечивает напуск спектрально чистого водорода и его изотопов на входную сторону исследуемого образца. Очистка водорода и его изотопов осуществляется с помощью палладий-серебряного фильтра. Спектрально чистый водород для экспериментов накапливается в ресиверную емкость до заданного давления. Система очистки и напуска оснащена вакуумными и газовыми трубопроводами, запорной арматурой и вакуумным насосом для обеспечения периодической откачки и напуска водорода на входной стороне образца после цикла измерений.

Информационно-измерительная система (ИИС) обеспечивает контроль параметров стенда в процессе работы и регистрацию проникновения водорода через исследуемый материал.

ИИС экспериментального стенда автоматизирована (рис. 4) и обеспечивает сбор, регистрацию данных и наблюдение в реальном времени. Авто-

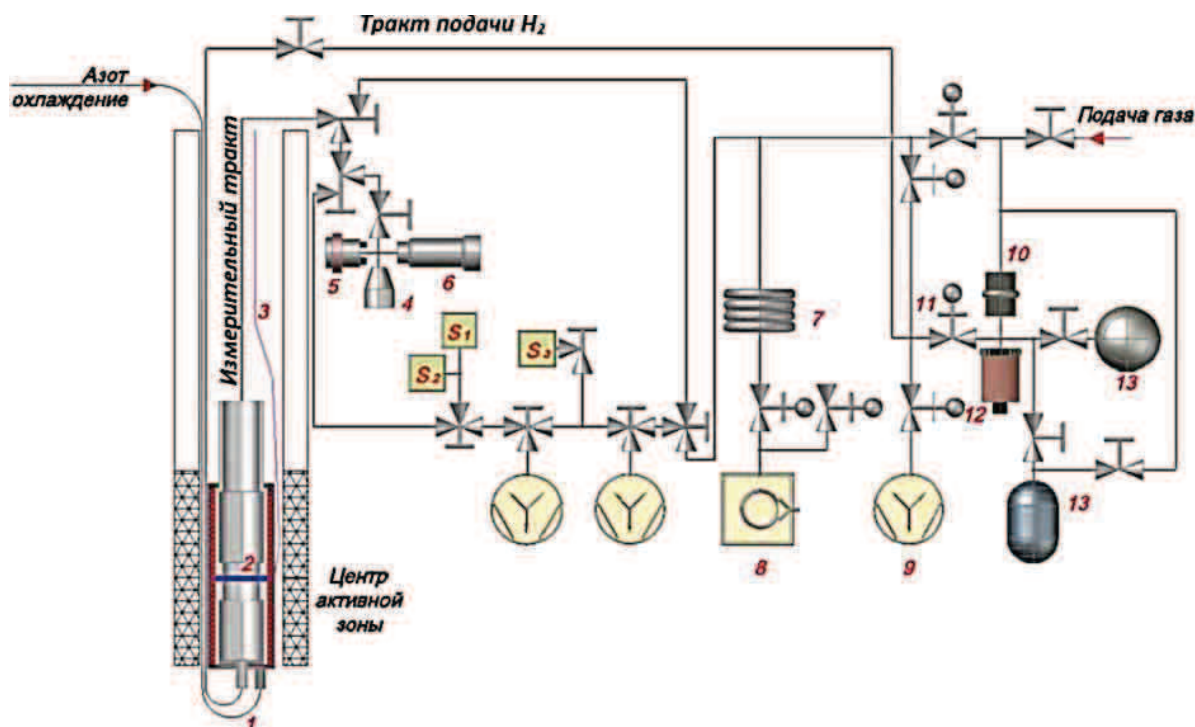


Рис. 3. Принципиальная схема вакуумной системы стана ЛИАНА: 1 – ампульное устройство с исследуемым образцом; 2 – исследуемый образец; 3 – термопары; 4 – датчик давления ConvectOrg; 5 – датчик давления ИКД-100; 6 – датчик давления IMG-100; 7 – азотная ловушка; 8 – форвакуумный насос; 9 – высоковакуумный насос; 10 – водородный фильтр; 11 – датчик давления ПМДГ; 12 – вакуумный вентиль; 13 – буферная емкость для спектрально чистого водорода; S1, S2, S3 – масс-спектрометры: ИГДО-1 (с датчиком РМО-13), МХ-6407; RGA-100

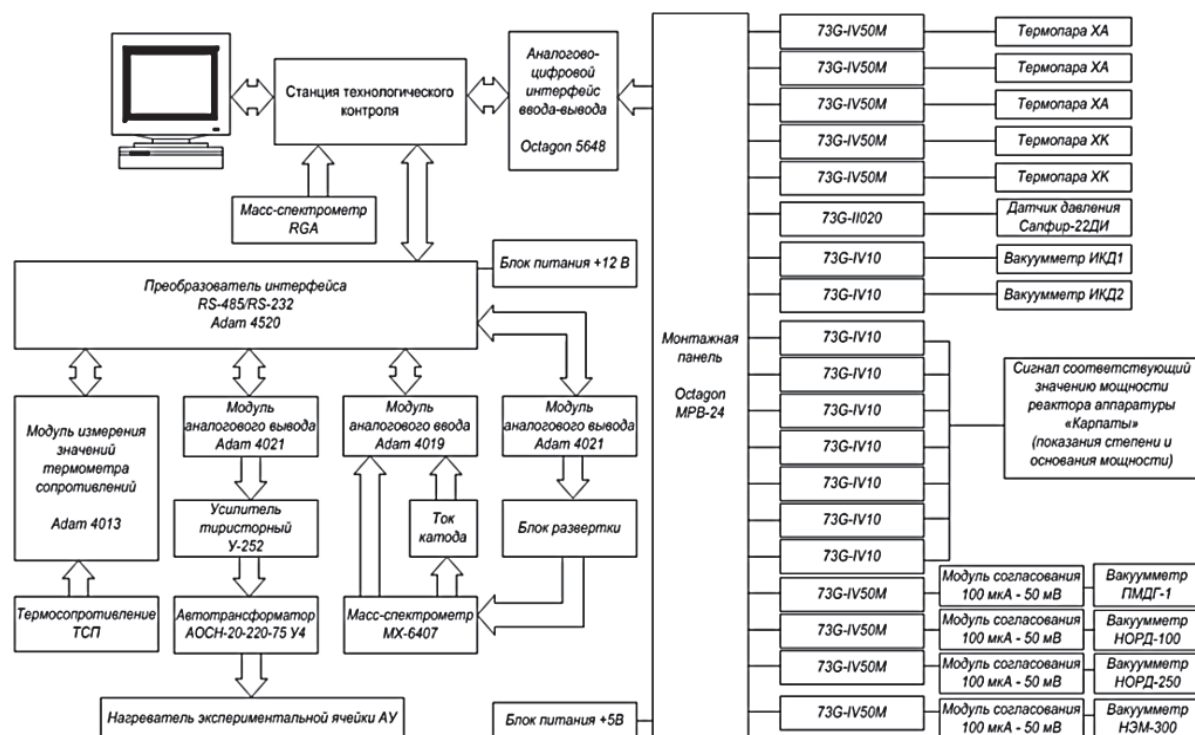


Рис. 4. Схема системы автоматизации, контроля и регистрации экспериментального стана

матизированное рабочее место (АРМ) инженера в составе ИИС находится в помещении, защищенном от излучений реактора, и предусматривает режимы функционирования: предпусковой, пусковой и послепусковой обработки. Функции представления оперативной технологической информации, управление режимами наблюдения и регистрации данных реализованы на базе графического компьютерного терминала ПЭВМ IBM PC.

Регистрация прохождения изотопов водорода через образец производится с помощью масс-спектрометров, установленных в выходной камере и позволяющих определять парциальные давления остаточных газов с точностью $\pm 10\%$ в диапазоне давлений от 10^{-3} до 10^{-8} Па. Система нагрева ячейки АУ с исследуемым образцом выполнена на базе высокоточного регулятора температуры (ВРТ) и обеспечивает реализацию всех необходимых температурных режимов в проводимых экспериментах с точностью ± 2 К. Измерение давления водорода и его изотопов в системах установки производится деформационным газоразрядным вакуумметром ВДГ-1, деформационным датчиком ИКД-100 и термопарным датчиком ConvecTorr.

Реакторные облучательные устройства для проведения экспериментов

Для реализации метода ВП при проведении реакторных исследований взаимодействия изотопов водорода с различными материалами были специально сконструированы облучаемые АУ.

АУ монтируется на экспериментальный стенд и размещается внутри корпуса ФКЭ реактора ИВГ.1М.

АУ включает в себя: экспериментальную диффузионную ячейку с исследуемым образцом, разделяющим вакуумную и газовую полости АУ; электрического нагревателя; устройства газового охлаждения; термопар и соединительного патрубка с фланцем. АУ обеспечивает размещение образца на уровне центра активной зоны реактора ИВГ.1М, откачку газовой и вакуумной полости экспериментальной ячейки, подачу водорода и его изотопов на входную сторону исследуемого образца, регулировку и поддержание исследуемого температурного режима образца.

Для проведения реакторных экспериментов по исследованию взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами SS316L (N)-IG, V4Cr4Ti и CuCrZr было разработано и изготовлено два типа экспериментальных диффузионных ячеек ампульных устройств, схематический вид которых представлен на рис. 5, 6.

На рис. 5 представлена экспериментальная ячейка АУ для проведения экспериментов со сталью SS316L (N)-IG. Исследуемый образец в виде мембраны вварен в диффузионную ячейку и разделяет входную и выходную камеры ячейки АУ.

В экспериментах по исследованию взаимодействия изотопов водорода со сплавом ванадия V4Cr4Ti и медной бронзы CuCrZr было использова-

но АУ с диффузионной ячейкой, представленной на рис. 6. Исследуемый образец в виде мембраны уплотнялся с помощью двух втулок с гермоуплотнением типа конфлат (образец V4Cr4Ti уплотнялся через медные прокладки с последующей диффузионной сваркой его с медью, а образец CuCrZr уплотнялся без прокладок).

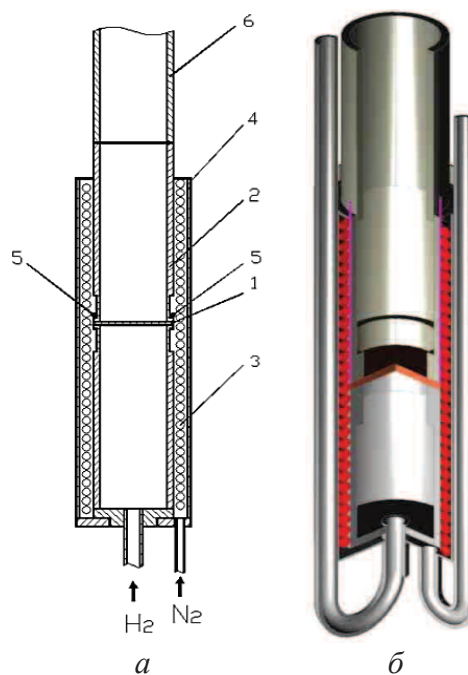


Рис. 5. Экспериментальная ячейка АУ для проведения экспериментов с образцом SS316L (N)-IG: 1 – образец; 2 – корпус экспериментальной ячейки; 3 – нагреватель; 4 – кожух охлаждения; 5 – термопары; б – корпус ампульного устройства

Диффузионная сварка исследуемого образца проводилась при температуре 1053 К под давлением около 150 кг/см^2 в течение трех часов при давлении во входной и выходной полости диффузионной ячейки 10^{-3} Па. С боковых сторон образца и медных прокладок в процессе сварки была организована продувка газообразным гелием.

Для нагрева исследуемого образца и обеспечения поддержания выбранных температурных режимов на корпус диффузионной ячейки симметрично относительно положения образца установлен нагреватель (провод КТМС ХК мощностью 300 Вт). Кроме того, для поддержания заданной температуры образца на ампульном устройстве смонтирована система охлаждения в виде установленного на экспериментальную ячейку кожуха охлаждения. Охлаждение предусматривает продувку газообразного азота через зазор между корпусом экспериментальной ячейки и кожухом охлаждения.

Контроль и регистрация температуры образца и стенки корпуса АУ осуществляется с помощью хромель-алюмелевых термопар, установленных непосредственно на исследуемом образце и на корпусе АУ.

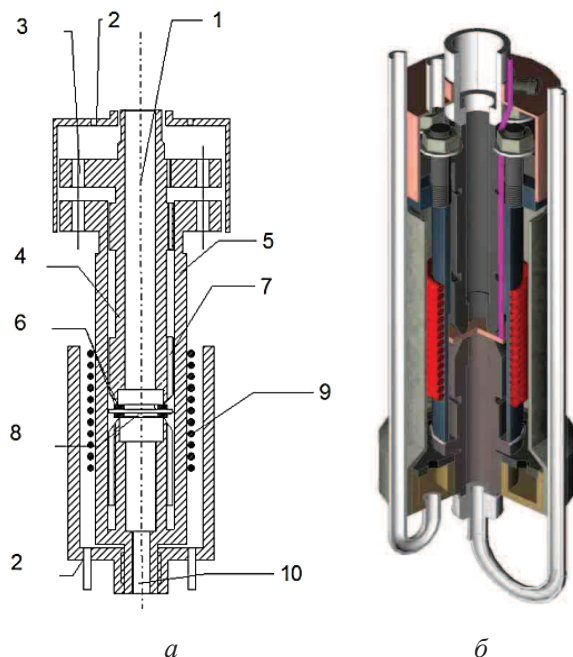


Рис. 6. Диффузионная ячейка АУ для проведения экспериментов с образцом V4Cr4Ti и CuCrZr: 1 – вакуумный тракт; 2 – трубка подачи охлаждающего газа; 3 – фланцевое соединение; 4 – выходной патрубок; 5 – выходной патрубок диффузионной сборки; 6 – медные прокладки; 7 – проточка для установки термопар; 8 – образец; 9 – нагреватель; 10 – узел подвода водорода

Исследования взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами методом водородопроницаемости проводились в три этапа: дореакторные, реакторные и послереакторные эксперименты.

Порядок измерений кинетики водородопроницаемости исследуемых образцов соответствовал методике, описанной в [3], с уточнениями для проведения реакторных экспериментов, которые заключались в следующем:

- перед проведением реакторных экспериментов по ВП исследуемого образца была проведена высокотемпературная дегазация диффузионной ячейки с образцом в процессе облучения (так называемый радиационный отжиг). Это делалось для уменьшения фона водорода в системе регистрации, который неизбежно возникает в результате радиационно-стимулированного газовыделения со стенок диффузионной ячейки и самой ампулы при работе реактора на мощности;
- изменен режим измерений в экспериментах. Так как реактор ИВГ.1М имеет ограниченный временной запас работы, то методические рекомендации, изложенные в [3] (а именно, рекомендуемый отжиг образца и порядок снятия временных зависимостей водородопроницаемости) не подходили к реакторным измерениям. Поэтому было необходимо спланировать все измерения таким образом, чтобы сделать явным наблюдаемый эффект влияния облучения на

процессы проникновения изотопов водорода сквозь исследуемые материалы.

Исследования взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами с учетом внесенных изменений проводились в следующей последовательности (этапы 1–3):

Этап 1: Дореакторный эксперимент.

Вначале исследуемый образец нагревается до температуры 973 К (для его дегазации), при непрерывной откачке входной и выходной сторон образца (время отжига образца составляло от 5 до 10 ч, в зависимости от исследуемого образца). Затем температура образца понижалась до исследуемой температуры, а в ресиверную емкость через разогретый (до 723 К) палладий-серебряный фильтр набирался спектрально чистый изотоп водорода (дейтерий). После установки заданной температуры образца и установления стационарного уровня по парциальному давлению водорода (дейтерия) в объеме выходной полости АУ на входную сторону образца подавался спектрально чистый водород (дейтерий), накопленный в ресиверной емкости фильтра с регистрацией давления (P). При этом в измерительном тракте регистрировалась кинетика установления стационарного потока исследуемого газа, проникающего сквозь образец, во времени (характерная форма кривой проницаемости представлена на рис. 1). После измерений оставшийся газ скачивался с входной стороны образца, а сам образец нагревался до температуры 973 К для удаления, растворенного в образце газа. Время отжига образца ограничивалось установлением стационарного значения парциального давления водорода в выходном объеме АУ. Далее температура образца понижалась до следующей исследуемой температуры и измерения повторялись.

Этап 2. Реакторный эксперимент.

Перед выходом реактора на мощность проводился отжиг исследуемого образца при температуре 973 К в течение двух часов. После этого температура образца понижалась до исследуемой, а реактор выводился на заданный уровень мощности. Далее эксперимент проводился по схеме, описанной в дореакторном этапе. После измерений кинетики водородопроницаемости при всех исследуемых температурах образца проводился сброс мощности реактора, а образец снова отжигался при температуре 973 К, после чего сразу проводился послереакторный эксперимент;

Этап 3. Послереакторный эксперимент.

Порядок эксперимента тот же, что на этапе 1.

Результатом проведенных вне реакторных и реакторных экспериментов являлись полученные временные зависимости кинетики проницаемости водорода и его изотопов сквозь исследуемый образец, по которым затем рассчитывались основные параметры водородопроницаемости, такие как коэффициент диффузии, константа проницаемости и растворимости водорода в исследуемом материале, а также энергии активации соответствующих процессов.

Далее в статье приводится описание методических особенностей проведения реакторных экспериментов с некоторыми конструкционными материалами, такими как: медная бронза CuCrZr, ванадиевый сплав V4Cr4Ti и нержавеющая сталь SS316L (N)-IG.

Методические особенности проведения реакторных экспериментов по ВП

Оценка методической ошибки, связанной с неравномерным температурным полем по радиусу мембраны

Одним из факторов, влияющих на возможную методическую ошибку при проведении эксперимента по ВП с образцом в виде мембраны, является градиент температуры по радиусу мембраны.

Первоначально были произведены расчетные оценки распределения температурного поля по радиусу мембраны (при толщине образца 1 мм) в случае разогрева материалов ячейки, когда температура периферийной области мембраны составляет 573, 823 и 1023 К.

По полученным распределениям температуры рассчитана разница между температурами в центре и на краю мембраны для образцов из различных исследуемых материалов (V4Cr4Ti, CuCrZr, SS316L (N)-IG) и для различных уровней мощности облучения. Данные таких расчетов приведены в табл. 2 как максимально возможный градиент температуры по образцу (поверхности мембраны). Относительную ошибку, которая возникает при определении параметров взаимодействия водорода с материалами (имеющих аррениусовскую температурную зависимость) из-за неравномерного температурного поля по мембране, можно оценить по формуле:

$$\delta = \left(1 - \exp \left(E_a \cdot \frac{\Delta T}{RT^2} \right) \right) \cdot 100 \%,$$

где δ – относительная ошибка; E_a – энергия активации процесса; ΔT – градиент температур по мембране при температуре мембраны T . (Значения энергии активации процессов растворимости, диффузии и проницаемости были определены экспериментально методом ВП). Данная формула применима при условии, что $\Delta T \ll T$. Кроме того, в табл. 2 приведены значения относительной ошибки в определении параметров ВП при максимальном градиенте температуры по образцу исследуемого материала и заданной средней температуре образца.

Анализируя полученные результаты оценок можно сделать следующие выводы:

1. Максимальный градиент температуры по мембране в диапазоне исследуемых температур от 573 до 1023 К составляет не более 5,5 К для ванадиевого сплава; 4,8 К для медной бронзы и не более 6,0 К для нержавеющей стали. Причем для всех материалов максимальный градиент

температуры по мембране наблюдается при проведении экспериментов без облучения при температуре образца 1023 К.

2. В реакторных экспериментах градиент температуры по мембране для всех материалов существенно меньше, чем во вне реакторных экспериментах без облучения, это связано с тем, что при облучении образцы прогреваются более равномерно, за счет радиационного энерговыделения в объеме мембраны.
3. Относительная ошибка в определении параметров взаимодействия зависит от энергии активации процесса (чем выше энергия активации, тем выше ошибка) и от средней температуры мембраны (чем ниже температура мембраны, тем выше ошибка). Диапазон значений относительной ошибки, обусловленной неравномерным нагревом мембраны в определении параметров ВП, составляет от 1 до 5 %.
4. Как видно из табл. 2, для ванадиевого сплава наибольшая ошибка при средней температуре 573 К в определении растворимости составляет 1,80 %; для медной бронзы в определении константы проницаемости – 3,25 % при той же температуре; для нержавеющей стали в определении константы проницаемости – 4,63 %.
5. Для проверки полученных расчетов во вне реакторных экспериментах по ВП с медной бронзой исследовалась ячейка (рис. 6), в которой непосредственно определялся градиент температур по мембране (температура фиксировалась на краю мембраны 2 термопарами, и одна термопара была установлена в центре мембраны). Полученные экспериментальные результаты показали, что максимальный градиент по мембране составил 3 ± 1 К при проведении вне реакторных экспериментов при средней температуре мембраны 873 К.

Таблица 2. Величины максимального градиента температур по образцу и относительной ошибки, возникающей при определении параметров ВП во вне реакторных экспериментах

Материал	Средняя температура образца, К	Максимальный градиент температуры по образцу, К	Относительная ошибка при определении параметров ВП, %		
			Константы проницаемости	Коэффициента диффузии	Растворимости
V4Cr4Ti	573	3,0	0,38	1,42	1,80
	823	4,1	0,25	0,94	1,19
	1023	5,5	0,22	0,82	1,04
CuCrZr	573	2,2	3,25	3,06	0,20
	823	3,3	2,38	2,23	0,15
	1023	4,8	2,24	2,10	0,14
SS316L(N)-IG	573	3,7	4,63	3,99	0,54
	823	4,6	2,82	2,42	0,33
	1023	5,9	2,35	2,01	0,27

Эксперименты по калибровке масс-спектрометрической системы регистрации экспериментального стенда для проведения реакторных экспериментов по ВП

Поскольку в реакторных исследованиях необходимо было регистрировать значения проникающих потоков сквозь образец, были проведены эксперименты по калибровке системы измерения, в ходе которой были получены передаточные функции, связывающие величину проникающего потока водорода (дейтерия) с показаниями масс-спектрометров, регистрирующими парциальные давления этих газов. Получение значений коэффициентов калибровки методом расчета было затруднительно. Поэтому проводились калибровочные эксперименты с целью определения коэффициента, связывающего величину проникающего потока водорода (дейтерия) сквозь образец с показаниями 3-х масс-спектрометров (омегатронного типа, на базе лампы РМО-13; радиочастотного МХ-6407; квадрупольного RGA-100).

Калибровочные эксперименты проводились на ампульном устройстве с образцом из ванадиевого сплава V4Cr4Ti при температуре образца 923 К (выбор материала определялся высокими значениями проницаемости данного материала).

Сам эксперимент состоял в следующем: в камеру на входную сторону образца подавался водород (дейтерий), с выходной стороны образца (в вакуумном объеме камеры с анализаторами) регистрировалась зависимость изменения проникающего потока водорода (дейтерия). На рис. 7 в качестве примера приведена зависимость изменения потока водорода зарегистрированная масс-спектрометром омегатронного типа, на базе лампы РМО-13 и давления водорода во входной камере. На рис. 8 приведены зависимости изменения количества водорода, прошедшего сквозь образец, рассчитанные по результатам интегрирования потока водорода сквозь образец (данные с масс-спектрометра) и по изменению давления на входной стороне образца. Видно, что форма этих зависимостей одинакова.

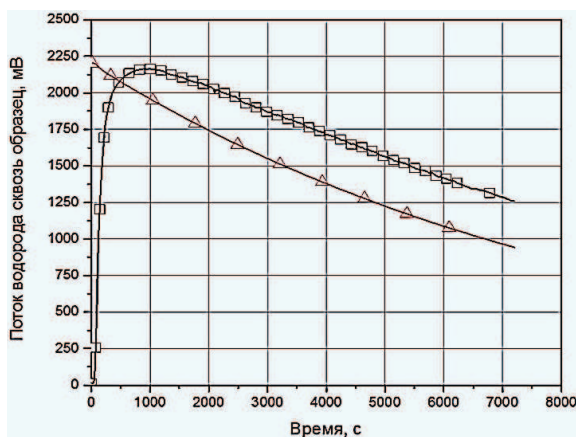


Рис. 7. Зависимость изменения потока водорода от времени в камере с масс-спектрометром и давления водорода во входной камере: $\square$ – поток водорода; $\triangle$ – входное давление водорода ($P_{вх}/1500$ торр)

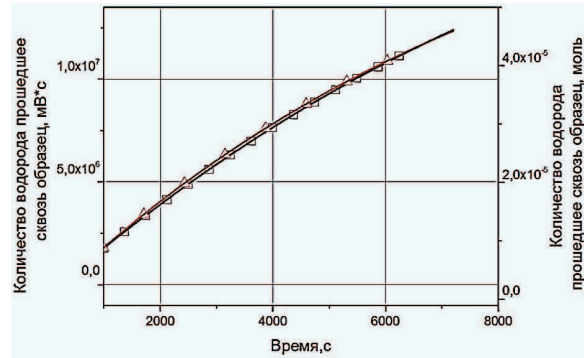


Рис. 8. Зависимость изменения количества водорода от времени, прошедшего сквозь образец: $\square$ – по результатам интегрирования потока водорода сквозь образец (данные с масс-спектрометра), мВ/с; $\triangle$ – рассчитанные из зависимости изменения давления на входной стороне образца, моль

Площадь под полученной кривой падения потока водорода определяет общее количество водорода, прошедшее сквозь образец

$$Q = k \int_0^{t_0} U(t) dt, \quad (1)$$

где Q – количество водорода (дейтерия), прошедшего сквозь образец (моль) за время t_0 (с); $U(t)$ – показания регистрирующего прибора (отн. единиц); k – коэффициент пропорциональности между показаниями регистрирующего прибора и потоком водорода (дейтерия) сквозь образец (моль/(с·отн. ед.)).

С другой стороны, количество прошедшего сквозь образец водорода выражается через уменьшение давления водорода во входной камере за время эксперимента

$$Q = \frac{V(P_0 - P_1)}{RT}, \quad (2)$$

где V – объем входной камеры, м³; $(P_0 - P_1)$ – изменение давления водорода (дейтерия) на входной стороне фильтра, Па; R – универсальная газовая постоянная, ($R=8,31$ Дж/(моль·К)); T – температура водорода во входной камере, $T=293$ К.

Таким образом, из выражений (1) и (2) определялись коэффициенты пропорциональности между показаниями регистрирующего прибора и потоком водорода (дейтерия) сквозь образец.

Было снято несколько калибровочных кривых (при различных уровнях потока водорода (дейтерия) сквозь образец), относительно которых были вычислены коэффициенты калибровки.

Кроме этого, описанные эксперименты позволили определить предел чувствительности системы измерения по величинам проникающих потоков водорода (дейтерия) сквозь образец, а также время отклика системы измерения для всех масс-спектрометров.

Рассчитанные значения коэффициентов калибровки, пределы чувствительности и времена отклика приведены в табл. 3.

Таблица 3. Параметры, полученные в экспериментах по калибровке системы измерения

Параметры	Диапазон потоков, моль/с	Масс-спектрометр омега-тронного типа, на базе лампы РМО-13, моль/(с·мВ)	Масс-спектрометр радиочастотный МХ-6407, моль/(с·мВ)	Масс-спектрометр квадрупольный RGA-100 (моль/(с·торр))
Коэффициент калибровки	от 10^{-8} до 10^{-10}	$(4,25 \pm 0,07) \cdot 10^{-12}$	$(6,7 \pm 0,50) \cdot 10^{-11}$	$(1,64 \pm 0,02) \cdot 10^{-2}$
	от 10^{-10} до 10^{-11}	$(4,35 \pm 0,09) \cdot 10^{-12}$	$(7,4 \pm 0,07) \cdot 10^{-11}$	$(1,70 \pm 0,04) \cdot 10^{-2}$
	от 10^{-11} до 10^{-12}	$(2,40 \pm 0,10) \cdot 10^{-12}$	$(8,0 \pm 0,15) \cdot 10^{-11}$	$(9,00 \pm 0,10) \cdot 10^{-3}$
	от 10^{-12} до 10^{-13}	—	—	$(8,50 \pm 0,15) \cdot 10^{-3}$
Предел чувствительности, моль/с		$\sim 2 \cdot 10^{-12}$	$\sim 1 \cdot 10^{-11}$	$\sim 2,5 \cdot 10^{-13}$
Время отклика, с		~ 3	~ 30	$\sim 0,5$

Для экспериментов по ВП точность в определении коэффициента калибровки определяла ошибку в полученных константах проницаемости и растворимости и составляла около 5 % (максимум 10 %) для всех серий экспериментов по ВП, а время отклика определяло ошибку в оценке коэффициента диффузии:

$$\delta = \frac{t}{\tau_{\text{зап}}},$$

где t – время отклика; $\tau_{\text{зап}}$ – время запаздывания. Величина δ менее 3 %.

Оценка ошибки в определении параметров ВП, обусловленной процессами установления и изменения в ходе эксперимента равновесного давления изотопов водорода на входной стороне образца

Одной из возможных причин ошибки в определении параметров ВП является ошибка, связанная с конечным временем установления давления изотопов водорода на входной стороне образца, а также с последующим его уменьшением в течение эксперимента за счет утечек водорода из системы. Утечки водорода обусловлены потоком водорода сквозь образец в камеру с масс-спектрометром и потоком водорода сквозь нагретые элементы конструкции ампульного устройства.

В экспериментах использовалась пассивная система стабилизации давления, которая позволяла увеличивать общее количество водорода с входной стороны образца за счет использования дополнительных буферных объемов, существенно увеличивающих (более чем в 20 раз) первоначальный объем камеры с входной стороны образца.

Были проведены эксперименты по определению скорости установления давления на входной стороне образца. Для входных давлений менее 4500 Па, время установления давления составило менее 2 с, что практически не приводило ни к какой значимой ошибке в определении коэффициента диффузии (максимальная относительная ошибка в определении коэффициента диффузии водорода в ванадиевом сплаве V4Cr4Ti при температуре образца 773 К составила около 1 %). Верхняя оценка принималась для ванадиевого сплава, так как коэффициенты диффузии и проницаемости водорода в ванадиевом сплаве на порядки величины выше, чем для других исследованных материалов.

Далее были проведены оценки возможной ошибки, связанной с падением входного давления водорода при проведении эксперимента. Максимальная ошибка также наблюдалась для ванадиевого сплава V4Cr4Ti при температуре образца 773 К. Уровень падения давления составлял не больше чем 0,01–0,025 Па/с, при уровне входного давления от 100 до 1000 Па. Величина ошибки в определении всех параметров ВП при таких уровнях падения давления составила менее 1 %.

Таким образом, были оценены основные методические ошибки в определении параметров ВП при проведении реакторных экспериментов по водородопроницаемости, и рассчитана общая относительная ошибка, которая составила менее 15 %.

Результаты применения метода водородопроницаемости в реакторных экспериментах по определению параметров водородопроницаемости в конструкционных материалах

По результатам реакторных экспериментов по определению параметров взаимодействия изотопов водорода с конструкционными материалами (медной бронзой CuCrZr, ванадиевым сплавом V4Cr4Ti и нержавеющей сталью SS316L (N)), проводимых по методике, описанной выше, и представленных в работах [12–14], можно сделать следующие выводы:

- эксперименты позволили определить аррениусовские зависимости таких параметров, как эффективные коэффициенты диффузии, константы проницаемости и растворимости водорода во всех исследованных материалах на всех этапах исследований (то есть в условиях реакторного облучения и без облучения) (рис. 9–11).
- удалось зафиксировать эффект влияния реакторного облучения, причем для различных материалов эффект был разным. Более явно эффект влияния реакторного облучения на процесс проницаемости водорода сквозь исследуемые образцы был выражен в экспериментах с ванадиевым сплавом V4Cr4Ti, при исследовании которого оказалось, что реакторное облучение более чем на порядок увеличивает скорость проникновения и установившийся поток водорода сквозь образец. Для стали SS316L (N)-IG реакторное облучение главным образом приводило к уменьшению скорости проникновения водорода при тем-

пературах менее 623 К (и соответственно к уменьшению эффективных коэффициентов диффузии водорода в стали). Для медной бронзы CuCrZr не удалось зафиксировать сильно выраженного эффекта влияния реакторного облучения на параметры взаимодействия водорода.

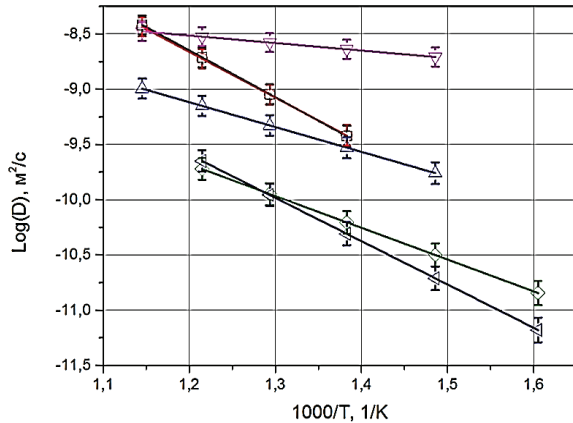


Рис. 9. Температурные зависимости эффективного коэффициента диффузии водорода сквозь исследуемые образцы: □ – вне реакторные эксперименты CuCrZr; ○ – реакторные эксперименты CuCrZr; △ – вне реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ▽ – реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ◇ – вне реакторные эксперименты SS316L; ◊ – реакторные эксперименты SS316L (N)-IG

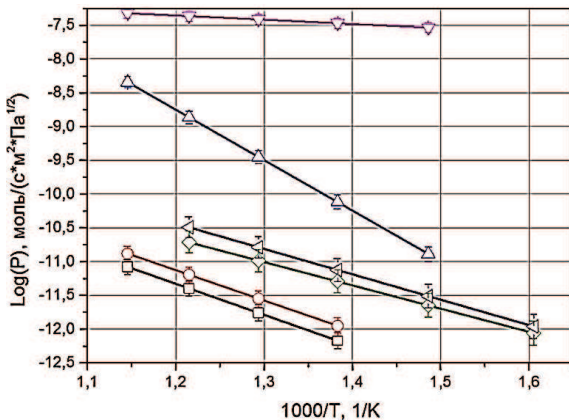


Рис. 10. Температурные зависимости константы проницаемости водорода сквозь исследуемые образцы: □ – вне реакторные эксперименты CuCrZr; ○ – реакторные эксперименты CuCrZr; △ – вне реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ▽ – реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ◇ – вне реакторные эксперименты SS316L (N)-IG; ◊ – реакторные эксперименты SS316L (N)-IG (погрешность измерений в пределах точки)

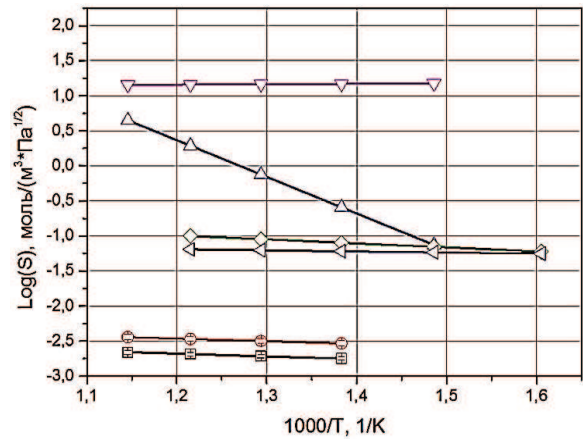


Рис. 11. Температурные зависимости константы растворимости водорода сквозь исследуемые образцы: □ – вне реакторные эксперименты CuCrZr; ○ – реакторные эксперименты CuCrZr; △ – вне реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ▽ – реакторные эксперименты V4Cr4Ti; ◇ – вне реакторные эксперименты SS316L (N)-IG; ◊ – реакторные эксперименты SS316L (N)-IG. (Погрешность измерений в пределах точки)

Заключение

Таким образом, в настоящей работе описана методика проведения реакторных исследований по взаимодействию изотопов водорода с конструкционными и функциональными материалами методом ВП, проведены оценки применимости данной методики и представлены результаты ее использования в реакторных экспериментах с конструкционными материалами: нержавеющая сталь SS316L (N)-IG, ванадиевый сплав V4Cr4Ti и медная бронза CuCrZr.

В целом предложенная методика проведения реакторных экспериментов по ВП показала свою применимость и позволила зафиксировать эффект влияния реакторного облучения на процессы взаимодействия изотопов водорода с данными конструкционными материалами.

Проведенные исследования возможных ошибок, возникающих при проведении реакторных экспериментов по ВП конструкционных материалов, показали, что данная методика применима для определения параметров взаимодействия изотопов водорода с материалами в условиях реакторного облучения. При этом возможная относительная ошибка измеряемых величин не может превышать 15 %.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Водород в диффузионных процессах химико-термической обработки металлов и сплавов / В. Г. Барьяхтар, [и др.]. Киев: Наукова думка, 1999. – 256 с.
2. Агеев В.Н., Бекман И.Н., Бурмистрова О.П. Взаимодействие водорода с металлами / под ред. А.П. Захарова. – М.: Наука, 1987. – 296 с.
3. ОСТ 92–4949–84. Отраслевой стандарт. Металлы. Методы определения высокотемпературной водородопроницаемости. – М., 1984. – 35 с.
4. Проницаемость водорода через металлы / А.А. Писарев, И.В. Цветков, Е.Д. Маренков, С.С. Ярков. – М.: МИФИ, 2008. – 144 с.
5. Crank J. The mathematics of diffusion. – Oxford: Oxford University press, 1975. – 425 p.
6. Габис И.Е., Компаниец Т.И., Курдюмов А.А. Поверхностные процессы и водородопроницаемость металлов // Взаимодействие водорода с металлами / под ред. А.П. Захарова. – М.: Наука, 1987. – С. 177–208.
7. Швыряев А.А., Бекман И.Н. Диаграммные бумаги для обработки результатов диффузионных экспериментов // Вестник МГУ. Сер. 2. Химия. – 1981. – Т. 22. – № 5. 517//N:4647–80 деп. ВИНТИ от 03.11.1980.
8. Кунин Л.Л., Головин А.М. и др. Проблемы дегазации металлов (феноменологическая теория) / под ред. А.П. Виноградова. – М.: Наука, 1972. – 324 с.
9. Тажибаева И.Л., Чихрай Е.В. Численное моделирование диффузии газов в твердых телах при облучении. – Алматы: Казанский университет, 1999. – 77 с.
10. Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Shestakov V.P. In-pile Tritium Permeation through F82H Steel with and without a Ceramic Coating of $\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ including CrPO_4 // Fusion Engineering and Design. – 2007. – V. 82. – Iss. 15–24. – P. 2246–2251.
11. Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Shestakov V.P. Investigation of hydrogen isotope permeation through F82H steel with and without a ceramic coating of $\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ including CrPO_4 (out-of-pile tests) // Fusion Engineering and Design. – 2006. – V. 81. – Iss. 1–7. – P. 701–705
12. Влияние реакторного излучения на процесс проникновения изотопов водорода сквозь нержавеющую сталь SS316IG / Е.А. Кенжин, И.Л. Тажибаева, Т.В. Кульсартов, Е.В. Чихрай, В.П. Шестаков // ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез. – 2008. – Вып. 2. – С. 36–40.
13. Investigations of reactor irradiation influence on hydrogen isotopes yield from $\text{V}_4\text{Cr}_4\text{Ti}$ vanadium alloy / Е.А. Kenzhin, I.L. Tazhibayeva, Y.V. Chikhray, V.P. Shestakov, T.V. Kulsartov // Abstracts of 12th Intern. conf. on fusion reactor materials. – USA, Santa Barbara, December 4–9, 2005. – P. 124.
14. Реакторные экспериментальные исследования взаимодействия дейтерия с ванадиевым сплавом $\text{V}_4\text{Cr}_4\text{Ti}$ / Т.В. Кульсартов, Ю.Н. Гордиенко, Н.И. Барсуков, Ю.В. Понкратов // Вестник НЯЦ РК. – 2007. – Вып. 3. – С. 80–85.

Поступила 14.01.2013 г.

UDC 621.039.553: 539.219.3

APPLICATION OF HYDROGEN PERMEATION METHOD IN REACTOR EXPERIMENTS ON INVESTIGATION OF HYDROGEN ISOTOPE INTERACTION WITH STRUCTURAL MATERIALS

Yury N. Gordienko,

Republic State Enterprise on the basis of economic control rights
«National nuclear center of Republic of Kazakhstan»,
branch of «Atomic Energy Institute», Kazakhstan, 071100, Kurchatov,
Krasnoarmeyskaya street, 10. E-mail: Gordienko@nnc.kz

Timur V. Kulsartov,

Cand. Sc., State Enterprise on the basis
of economic control rights «National nuclear center of Republic of Kazakhstan»,
branch of «Atomic Energy Institute», Kazakhstan, 071100, Kurchatov,
Krasnoarmeyskaya street, 10. E-mail: Kulsartov@nnc.kz

Zhanna A. Zaurbekova,

State Enterprise on the basis of economic control rights «National nuclear center
of Republic of Kazakhstan», branch of «Atomic Energy Institute», Kazakhstan,
071100, Kurchatov, Krasnoarmeyskaya street, 10. E-mail: Zaurbekova@nnc.kz

Yury V. Ponkratov,

State Enterprise on the basis of economic control rights «National nuclear center
of Republic of Kazakhstan», branch of «Atomic Energy Institute»,
Kazakhstan, 071100, Kurchatov, Krasnoarmeyskaya street, 10.
E-mail: Ponkratov@nnc.kz

Vyacheslav S. Gnyrya,

State Enterprise on the basis of economic control rights «National nuclear center
of Republic of Kazakhstan», branch of «Atomic Energy Institute», Kazakhstan,
071100, Kurchatov, Krasnoarmeyskaya street, 10. E-mail: slava@nnc.kz

Nikolay N. Nikitenkov,

Dr. Sc., Tomsk Polytechnic University,
Russia, 634034, Tomsk, Lenin avenue, 30. E-mail: nikitenkov@tpu.ru

The relevance of the study is caused by the necessity to develop methodical and instrumental bases for researching hydrogen isotope interaction with different materials under reactor irradiation.

The main aim of the study is to develop and to test the technique on determining hydrogen isotope interaction parameters with structural materials under reactor irradiation; to carry out the estimates and experiments confirming the possibility of using the technique.

The methods used in the study: thermophysical, neutron calculations methods of ampoule devices and method of hydrogen permeation were used.

The results: The paper introduces the principle concepts of material reactor investigation technique using the hydrogen permeation method, estimates of the technique applicability and the results of its application at the reactor experiments with structural materials, such as steel SS316L (N)-IG, vanadium alloy V4Cr4Ti and copper bronze CuCrZr.

Key words:

Hydrogen permeation method, hydrogen, hydrogen isotopes, reactor irradiation, diffusivity, permeability, solubility.

REFERENCES

1. Baryakhtar V.G. *Vodorod v diffuzionnykh protsessakh khimiko-termicheskoy obrabotki metallov i splavov* [Hydrogen in diffusion processes of chemical-thermal processing of metals and alloys]. Kiev, Naukova dumka, 1989. 256 p.
2. Ageev V.N., Bekman I.N., Burmistrova O.P. *Vzaimodeystvie vodoroda s metallami* [Hydrogen interaction with metals]. Moscow, Nauka, 1987. 296 p.
3. OST 92-4949-84. *Otraslevoy standart. Metally. Metody opredeleniya vysokotemperaturnoy vodorodopronitsaemosti* [Sectorial standard 92-4949-84. Metals. Methods of determination of high-temperature hydrogen permeability]. Moscow, 1984. 35 p.
4. Pisarev A.A., Tsvetkov I.V., Marenkov E.D., Yarko S.S. *Pronitsaemost vodoroda cherez metally* [Hydrogen permeability through metals]. Moscow, MIFI, 2008. 144 p.
5. Crank J. *The mathematics of diffusion*. Oxford, Oxford University press, 1975. 425 p.
6. Gabis I.E., Kompaniets T.I., Kurdyumov A.A. *Poverkhnostnye protsessy i vodorodopronitsaemost metallov* [Surface processes and hydrogen permeability]. *Vzaimodeystvie vodoroda s metallami*

- mi [Hydrogen interaction with metals]. Moscow, Nauka, 1987. pp. 177–208.
7. Shvyryaev A.A., Bekman I.N. Diagrammnye bumagi dlya obrabotki rezultatov diffuzionnykh eksperimentov [Diagrammed documents for processing diffusion experiment results]. *Bulletin of the Moscow State University*, 1981, vol. 22, no 5. 517.N:4647–80 dep. VINITI from 03.11.1980.
8. Kunin L.L., Golovin A.M. *Problemy degazatsii metallov (fenomenologicheskaya teoriya)* [Issues of metals degassing (phenomenological theory)]. Moscow, Nauka, 1972. 324 p.
9. Tazhibayeva I.L., Chikhray E.V. *Chislennoe modelirovanie diffuzii gazov v tverdykh telakh pri obluchenii* [Numerical modeling of gas diffusion in solids under irradiation]. Almaty, Kazakhuniversity, 1999. 77 p.
10. Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Shestakov V.P. In-pile tritium permeation through F82H steel with and without a ceramic coating of $\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ including CrPO_4 . *Fusion Engineering and Design*, 2007, vol. 82, Iss. 15–24, pp. 2246–2251.
11. Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Shestakov V.P. Investigation of hydrogen isotope permeation through F82H steel with and without a ceramic coating of $\text{Cr}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ including CrPO_4 (out-of-pile tests). *Fusion Engineering and Design*, 2006, vol. 81, Iss. 1–7, pp. 701–705.
12. Kenzhin E.A., Tazhibayeva I.L., Kulsartov T.V., Chikhray Y.V., Shestakov V.P. Vliyanie reaktornogo izlucheniya na protsess proniknoveniya izotopov vodoroda skvoz nerzhaveyushchuyu stal SS316IG [Influence of reactor irradiation on hydrogen isotopes permeation through stainless steel SS316IG]. *VANT, Thermonuclear fusion*, 2008, vol. 2, pp. 36–40.
13. Kenzhin E.A., Tazhibayeva I.L., Chikhray Y.V., Shestakov V.P., Kulsartov T.V. Investigations of reactor irradiation influence on hydrogen isotopes yield from $\text{V}_4\text{Cr}_4\text{Ti}$ vanadium alloy. *ICFRM 2005: Abstracts of 12th Intern. conf. on fusion reactor materials*. Santa Barbara, USA, December 4–9, 2005. pp. 124.
14. Kulsartov T.V., Gordienko Yu.N., Barsukov N.I., Ponkratov Yu.V. Reaktornye eksperimentalnye issledovaniya vzaimodeystviya deyteriya s vanadievym splavom $\text{V}_4\text{Cr}_4\text{Ti}$ [In-pile experimental researches of deuterium interaction with $\text{V}_4\text{Cr}_4\text{Ti}$ vanadium alloy]. *Bulletin of National Nuclear Center of RK*, 2007, vol. 3, pp. 80–85.