

Lektesten voor afdichtingen van afvalvaten voor tritiumhoudend afval

KANDIDAAT

Marliese Verbruggen

BEDRIJFSPROMOTOR

Ir. Johan Braet

SCK•CEN, Beheer van Afval en Technisch Passiva

HOGESCHOOLPROMOTOR

Dr. Linda Beenaerts

Master in de industriële wetenschappen: chemie

2007-2008

Lektesten voor afdichtingen van afvalvaten voor tritiumhoudend afval

KANDIDAAT

Marliese Verbruggen

BEDRIJFSPROMOTOR

Ir. Johan Braet

SCK•CEN, Beheer van Afval en Technisch Passiva

HOGESCHOOLPROMOTOR

Dr. Linda Beenaerts

Master in de industriële wetenschappen: chemie

2007-2008

Dankwoord

Allereerst wil ik mijn promotoren bedanken. Johan Braet van SCK●CEN, omdat hij mij de kans heeft gegeven om binnen zijn groep een stage te mogen doen en Linda Beenaerts voor de goede begeleiding. Ook wil ik hen beiden bedanken voor het verbeterwerk en de goede raadgevingen.

Kris Dylst stond mij bij op theoretisch vlak, Sven Vanderbiesen op praktisch vlak en John Seghers die stond ook altijd klaar voor een woordje uitleg, hiervoor bedankt. Zij maakten er ook een aangename en leerrijke ervaring van samen met de medestagiaires.

Verder wil ik nog iedereen bedanken die op één of andere manier heeft geholpen bij de uitvoering van mijn stage en het schrijven van dit eindwerk en/of heeft bijgedragen aan de plezierige omstandigheden waarin ik het afgelopen schooljaar aan mijn eindwerk heb gewerkt.

Ten laatste wil ik mijn ouders bedanken voor de kans die ze mij geboden hebben om verder te studeren.

Samenvatting

Tritium is een radioactief isotoop van waterstof dat als brandstof wordt gebruikt in de huidige en toekomstige onderzoeksreactoren naar fusie. Een belangrijke afvalstroom bij deze reactoren is de hitte bestendige binnenbekleding van het reactorvat. Deze binnenbekleding bestaat uit tegels, die na gebruik in de reactor, met tritium besmet zijn.

Deze masterproef onderzoekt de eerste experimentele stap in een project van SCK•CEN om een afvalvat te ontwikkelen voor het opslaan van tritium besmette tegels uit een fusiereactor. Verschillende mogelijke afdichtingen, die voor de sluiting van deze afvalvaten gebruikt kunnen worden, worden getest op hun lektheid t.o.v. tritium. De specifieke moeilijkheid hierbij is dat tritium gemakkelijk doorheen materialen diffundeert.

Er worden twee verschillende soorten afdichtingen getest: elastomere o-ringen en metalen c-ringen. Voor de elastomere o-ringen zijn 7 verschillende materialen geëvalueerd: nitrilerubber, neopreen, Viton®, polyurethaanrubber, epichlorohydrinerubber, siliconenrubber en butylrubber. De Viton® o-ringen zijn in twee verschillende hardheden getest. Voor de metalen ringen is gekozen voor c-ringen met veerondersteuning. Alle metalen ringen bestaan uit een nikkel-chroomlegering (X750) met een coating van zilver, aluminium of koper.

Deze masterproef behandelt niet enkel de lektesten van de verschillende soorten afdichtingen maar ook het ontwerp van een opstelling om de lektheid van afdichtingsringen voor getritieerd waterstofgas te kunnen testen. Een set van speciaal ontworpen flenzen vormt het hoofdonderdeel van deze opstelling. De flenzen zijn zo ontworpen, dat indien tritium langs de o- of c-ring lekt, dit terecht komt in een dragergasstroom van waaruit het tritium wordt opgevangen en gemeten.

Bij de experimenten is er een duidelijk verschil gemeten tussen de lektheid van de metalen en de elastomere afdichtingen en tussen verschillende soorten elastomere afdichtingen onderling. De elastomere o-ringen zijn beduidend minder lekdicht voor tritium dan de metalen c-ringen. Bij de elastomere o-ringen hebben Viton®, epichlorohydrinerubber en butylrubber de beste lektheid t.o.v. tritium. Bij de metalen ringen was het tritium lek steeds beneden de detectielimiet en kon er geen differentiatie worden gemaakt tussen de verschillende coatings binnen het kader van dit eindwerk. Een langere duurtijd van de experimenten en gebruik van waterstofgas met een hogere tritiumconcentratie zou dit wel mogelijk maken.

Abstract

Tritium is a radioactive isotope of hydrogen that is used as fuel in present-day and future fusion research reactors. The heat resistant plasma facing tiles form an important waste stream with these reactors. After use in the reactor, the tiles are contaminated with tritium.

This master thesis examines the first experimental step in a project of SCK•CEN to develop a waste vessel to store tritium contaminated tiles from a fusion reactor. Several potential seals, which can be used for the closure of a waste vessel, are tested for their leak tightness with respect to tritium. The specific difficulty is that tritium easily diffuses through several materials.

Two different types of seals were tested: elastomeric o-rings and metal c-rings. Seven different types of elastomeric o-rings were tested: nitrile, neoprene, Viton®, polyurethane, epichlorohydrin, silicone rubber and butyl. Two hardness variants of the Viton® o-rings have been tested. The metal c-rings are spring-energized c-rings. All metal c-rings exist from nickel-chrome alloys (X750) with a coating of silver, aluminum or copper.

Besides the leak tests of different types of closure seals this master thesis also covers the design of the experimental set-up that enabled SCK•CEN to perform these tritium leak tests. A set specially designed flanges are the main component of this experimental set-up. The flange design ensures that tritium gas that leaks through the tested seal is captured by a carrier gas and transported to a tritium measurement system.

The experiments showed clearly that the metal c-rings outperformed the elastomeric o-rings on leak tightness for tritium. The used experimental method was sensitive enough to detect differences in tritium leak tightness between the different elastomeric rings. With these rings Viton®, epichlorohydrin and butyl performed best. However, the experimental method was not sensitive enough to measure tritium leaks when metallic c-rings were used. Prolonging the duration of the experiment and/or using hydrogen gas with a higher tritium concentration might be possibilities to still determine the leak tightness of metallic rings with the used experimental setup.

Résumé

Le tritium est un isotope radioactif de l'hydrogène utilisé comme carburant dans les réacteurs de fusion. Une part importante des déchets produits dans ces réacteurs est la paroi de la cuve de réacteur. La paroi se compose de tuiles, qui, après leur utilisation dans le réacteur, seront contaminées par le tritium.

Cette thèse étudie la première étape d'un projet expérimental du SCK•CEN en vue de développer le design d'un fût de stockage des tuiles contaminées. Plusieurs types de joints, qui assureront l'étanchéité des fûts, ont été testés par rapport à leur étanchéité au tritium.

Deux types de joints ont été testés: des joints toriques en matériau polymère et des joints métalliques ayant une section en forme de c. Pour les joints en polymère, les matériaux suivants ont été évalués: Acrylonitrilerubber butadiène, néoprène, Viton®, polyuréthane, polyépichlorohydrin, caoutchouc siliconé et butyl. Différentes duretés ont été testées pour les joints en Viton®. Les joints métalliques sont pourvus d'un ressort qui limite leur déformation. Le matériau de ces joints est constitué par un alliage de nickel et chrome (X750) avec un revêtement d'argent, d'aluminium ou de cuivre.

Cette thèse aborde non seulement les tests d'étanchéité des différents types de joints, mais aussi la conception d'une installation expérimentale pour tester l'étanchéité des joints par rapport au tritium. Un ensemble de brides spécialement conçues est l'élément essentiel de cette préparation. Les brides sont conçues de telle sorte que le tritium qui s'échappe par le joint se retrouve dans un courant de gaz vecteur canalisé par la bride.

Les résultats expérimentaux montrent une nette différence d'étanchéité entre les joints métalliques et polymères d'une part, et au sein des matériaux polymères testés d'autre part. Les joints polymères sont nettement moins étanches vis-à-vis du tritium que les joints métalliques. Parmi les matériaux polymères testés: Viton®, ECO et butyl offrent la meilleure étanchéité vis-à-vis du tritium. Le débit de fuite de tritium au travers des joints métalliques n'a pas pu être mesuré car celui-ci était inférieur à la limite de détection du système expérimental. Pour y remédier, on pourrait accroître la durée des expériences et travailler avec un mélange gazeux hydrogène/tritium contenant une plus large proportion de tritium.

Inhoudsopgave

DANKWOORD	I
SAMENVATTING	II
ABSTRACT	III
RESUME	IV
FIGUREN, TABELLEN EN GRAFIEKEN	VII
FIGUREN.....	VII
TABELLEN.....	VIII
GRAFIEKEN.....	VIII
LIJST MET AFKORTINGEN	9
1 INLEIDING	1
2 STUDIECENTRUM VOOR KERNENERGIE	2
3 TRITIUM	5
3.1 GESCHIEDENIS.....	5
3.2 EIGENSCHAPPEN.....	6
3.2.1 Tritiumverval.....	6
3.2.2 Penetratiediepte van de β -deeltjes uitgezonden bij tritiumverval.....	7
3.2.3 Chemische vormen.....	8
3.2.4 Contaminatie.....	9
3.2.5 Biologische effecten.....	9
3.3 BRONNEN VAN TRITIUM.....	10
3.3.1 Natuurlijke bronnen.....	11
3.3.2 Antropogene bronnen.....	11
3.4 TRITIUMMETING: VLOEISTOFSCINTILLATIETELLING.....	14
3.4.1 Principe.....	14
3.4.2 Samenstelling van de scintillatievloeistof.....	15
3.4.3 Doving en quenching.....	17
3.4.4 Opbouw van een LSC toestel.....	17
3.5 BESCHERMING TEGEN DE GEVAREN VAN TRITIUM.....	18
3.5.1 Labojas.....	18
3.5.2 Schoenovertrekken.....	18
3.5.3 Handschoenen.....	18
3.5.4 Handschoenkast.....	18
3.5.5 Trekkast.....	19
3.5.6 Procescel.....	19
3.5.7 Ventilatie.....	19
3.5.8 Beschermingspakken.....	19
3.5.9 Controle labolucht.....	19
4 OPSLAG VAN TRITIUMHOUDEND AFVAL	20
4.1 BERGING VAN RADIOACTIEF AFVAL.....	20
4.1.1 Oppervlakteberging voor kortlevend radioactief afval (categorie A).....	21
4.2 VATEN VOOR OPSLAG VAN TRITIUMHOUDEND AFVAL.....	22
4.2.1 Druk in het afvalvat.....	23
5 AFDICHTINGEN	26
5.1 INLEIDING.....	26
5.2 ELASTOMERE O-RINGEN.....	26
5.2.1 Afdichtingsprincipe.....	26
5.2.2 Toepassingen.....	28
5.2.3 Eigenschappen van elastomeren.....	29
5.2.4 Soorten elastomeren.....	35
5.2.5 Opslag van elastomere o-ringen.....	40
5.3 METALEN AFDICHTINGEN.....	41

5.3.1	<i>Inleiding</i>	41
5.3.2	<i>C-ringen</i>	42
5.3.3	<i>Algemene eigenschappen van metalen</i>	44
5.3.4	<i>Materialen</i>	45
6	TESTEN VAN AFDICHTINGEN	48
6.1	CONCEPT	48
6.2	GASLEKKEN	49
6.2.1	<i>Inleiding</i>	49
6.2.2	<i>Stroming van een gas door een opening of scheur</i>	49
6.2.3	<i>Permeatie en diffusie</i>	53
6.3	TESTOPSTELLING SCK	59
6.3.1	<i>Afdichtingen</i>	61
6.3.2	<i>Tritiumbron</i>	62
6.3.3	<i>Druk in de kamer van de flens</i>	64
6.3.4	<i>Tritiummeting</i>	64
7	RESULTATEN	65
7.1	PROEF 1	65
7.2	PROEF 2	68
7.3	PROEF 3	70
7.4	PROEF 4	72
7.5	CONCLUSIE	74
8	ALGEMEEN BESLUIT	75
	BIJLAGEN	77
	LITERATUURLIJST	81

Figuren, tabellen en grafieken

Figuren

Figuur 2.1:	Organogram.	3
Figuur 3.1:	Deuterium-tritium fusiereactie.	13
Figuur 3.2:	JET.	13
Figuur 3.3:	Photomultipliertube, fotonenvermenigvuldiger (PMT,PM).	15
Figuur 3.4:	Schematische voorstelling van een LSC toestel.	18
Figuur 4.1:	Inplanting van het STOLA-ontwerp voor oppervlakteberging in Dessel. .	22
Figuur 4.2:	CFC-tegels in de JET-reactor.	23
Figuur 5.1:	O-ring bovenaanzicht en doorsnede.	26
Figuur 5.2:	Afdichting met o-ring.	27
Figuur 5.3:	Spleetextrusie.	27
Figuur 5.4:	Axiale indrukking van een o-ring.	28
Figuur 5.5:	Radiale indrukking van een o-ring.	28
Figuur 5.6:	O-ring in een deksel.	29
Figuur 5.7 :	O-ring als afdichting bij een zuiger.	29
Figuur 5.8:	Compression set.	32
Figuur 5.9:	Algemene structuurformule van nitrilerubber.	35
Figuur 5.10:	Algemene structuurformule van chloropreenrubber.	35
Figuur 5.11:	Algemene structuurformule van een fluorcarbonrubber.	36
Figuur 5.12:	Polyadditiereactie ter vorming van polyurethaanrubber.	37
Figuur 5.13:	Algemene structuurformule van epichlorohydrinerubber.	37
Figuur 5.14:	Algemene structuurformule van PIB.	38
Figuur 5.15:	Algemene structuurformule van siliconenrubber.	38
Figuur 5.16:	Doorsnede c-ring.	42
Figuur 5.17:	Druk die binnenin een c-ring werkt op de wanden.	43
Figuur 6.1:	Flens met afdichtingen.	48
Figuur 6.2:	Dwarsdoorsnede flens voor o-ring. (in mm)	49
Figuur 6.3:	Turbulente stroming.	50
Figuur 6.4:	Laminaire stroming.	50
Figuur 6.5:	Moleculaire stroming.	51
Figuur 6.6:	Transitionele stroming.	52
Figuur 6.7:	Vat om tritiumafval in op te slaan.	55
Figuur 6.8:	Schematische voorstelling van de testopstelling.	59

Figuur 6.9:	Links: de flenzen. Rechts: rotameters, flenzen en borrelflesjes.....	60
Figuur 6.10:	Doorsnede van een flens voor een metalen c-ring. (in mm) (zie ook bijlagen)	60
Figuur 6.11:	Bovenaanzicht flens met groeven.	61
Figuur 7.1:	Schematische voorstelling opbouw flenzen met de te testen afdichtingen in proef 1.	65
Figuur 7.2:	Schematische voorstelling opbouw flenzen met de te testen afdichtingen in proef 3.	70

Tabellen

Tabel 3.1:	Isotopen van waterstof.	6
Tabel 3.2:	Penetratiediepten van een β -deeltje, afkomstig van tritiumverval.....	8
Tabel 3.3:	Productie van tritium in kernreactoren.....	12
Tabel 5.1:	Overzicht belangrijkste eigenschappen van de elastomeren.....	39
Tabel 5.2:	Overzicht belangrijkste eigenschappen van de elastomeren, vervolg.....	39
Tabel 5.3:	Minimale opslagtijden elastomere o-ringen.....	40
Tabel 6.1:	Lekgroottes en verband tussen het massadebiet en de druk stroomopwaarts (p_1) en stroomafwaarts (p_2).	53
Tabel 7.1:	Meetresultaten proef 1.	66
Tabel 7.2:	Berekening lekgroote HT proef 1.	67
Tabel 7.3:	Meetresultaten proef 2.	69
Tabel 7.4:	Berekening lekgroote HT proef 2.	69
Tabel 7.5:	Meetresultaten proef 3.	71
Tabel 7.6:	Berekening lekgroote HT proef 3.	71
Tabel 7.7:	Meetresultaten proef 4.	72
Tabel 7.8:	Berekening lekgroote HT proef 3.	73
Tabel 7.9:	Samenvatting lekgrootten.	74

Grafieken

Grafiek 3.1:	Het percentage tritium dat nog in het lichaam aanwezig is, gebaseerd op een halveringstijd van 10 dagen (gemiddelde voor mensen) en een halveringstijd van 3 dagen (bij een verhoogde waterinname).	10
Grafiek 3.2:	Absorptie- en emissiespectrum van POPOP en PMP.	17
Grafiek 5.1:	Hardheid in functie van de temperatuur van verschillende elastomeren. ...	31
Grafiek 5.2:	Compressiecyclus van een c-ring.....	42
Grafiek 6.1:	Permeatiesnelheid in functie van de tijd.	53

Lijst met afkortingen

SCK•CEN:	StudieCentrum voor Kernenergie – Centre d'étude de l'Énergie Nucleaire.
JET:	Joint European Torus.
ITER:	International Thermonuclear Experimental Reactor.
Bq:	Becquerel.
A:	Activiteit.
HT:	Getritieerd waterstofgas.
HTO:	Getritieerd water.
HWR:	Heavy Water Reactor.
LWR:	Light Water Reactor.
IRHD:	International Rubber Hardness Degrees.
°Shore A:	Maat voor de hardheid van materialen.
IIR:	Polyisobuteen, butylrubber.
PUR:	Polyurethaanrubber.
NBR:	Acrylonitrilerubber butadien, nitrilerubber.
FKM:	Fluorcarbonelastomeer, Viton®.
CR:	Neopreen.
VMQ:	Siliconenrubber.
ECO:	Epichlorohydrinerubber.
X750:	Nikkel-chroomlegering.
TPBARs:	Tritium Producing Burnable Rods
DPM:	Desintegraties Per Minuut.
LSC:	Liquid Scintillation Counter.
PM:	Photo Multiplier.
PMT:	Photo Multiplier Tube.
PS:	Primaire Scintillator.
SS:	Secundaire Scintillator.
RVS:	Roestvrij Staal.
CFC:	Carbon Fibre Composite.

1 Inleiding

Sinds een paar decennia wordt er veel tijd besteed aan het onderzoek naar kernfusie. Eerst was er de Joint European Torus (JET) in Groot-Brittannië die werd gebouwd voor onderzoek naar kernfusie en nu wordt volop aan een experimentele fusiereactor in Frankrijk gebouwd (ITER^a). Deze testreactor heeft als doel de technische en wetenschappelijke haalbaarheid van kernfusie als energiebron aan te tonen. Hoewel de testreactor niet als doel heeft elektriciteit te produceren, wordt getracht 10 keer meer vermogen op te wekken dan wordt geïntroduceerd.

Bij het huidige concept van kernfusiereactoren worden tritium en deuterium als brandstof gebruikt. Deuterium en tritium zijn isotopen van waterstof. Tritium is een radioactief isotoop. De onderdelen van een fusiereactor worden radioactief, enerzijds door neutronen geïnduceerde activatie en anderzijds door besmetting met de tritiumbrandstof. Een fusiereactor produceert ongeveer evenveel afval als een fissiereactor, maar door de korte halveringstijden kan het meeste afval afkomstig van een fusiereactor al na enkele honderden jaren worden vrijgegeven.

Het getritieerde afval kan gasvormig, vloeibaar of vast zijn. Uit vloeibaar en vast getritieerd afval kan er continu getritieerd gas ontsnappen door desorptie van vluchtige componenten, T₂ gas of isotopische uitwisselingsreacties met aanwezige waterstof in de atmosfeer. Al het afval moet correct behandeld en geconditioneerd worden om de tritiumverliezen te verkleinen tot een aanvaardbaar laag niveau, zodat zowel de werknemers als de bevolking beschermd worden tegen blootstelling aan tritium.

Voor de ontmanteling van JET en met ITER in spé, is het nodig om een manier te vinden om tritiumhoudend afval op te slaan. Eén van de problemen bij tritiumopslag is dat het een zodanig klein element is, dat het door de meeste materialen heen diffundeert. Het is de bedoeling dat het afval in afvalvaten terecht komt, deze vaten kunnen dan in een bergingsruimte voor laag-radioactief afval worden opgeslagen. Het doel van dit eindwerk is het testen van een zwakke schakel van de afvalvaten: *de afdichting*.

^a ITER stond vroeger voor 'International Thermonuclear Experimental Reactor', maar de afkorting wordt niet meer gebruikt in die zin. Iter betekent in het Latijn de weg.

2 Studiecentrum voor kernenergie

Het Belgisch Studiecentrum voor Kernenergie (SCK•CEN) is een Stichting van Openbaar Nut (SON), met een privaatrechtelijk statuut, onder voogdij van de federale minister van Energie.

Het SCK•CEN telt ongeveer 600 medewerkers, waarvan één derde houder is van een universitair diploma. De omzet bedraagt ongeveer 80 miljoen euro per jaar: 50% directe overheidssubsidies, 10% indirect via activiteiten voor ontmanteling van vrijgegeven installaties en 40% inkomsten uit contractwerk en dienstverlening.

Het SCK•CEN werd opgericht in 1952 teneinde de Belgische academische en industriële wereld toegang te verschaffen tot de wereldwijde ontwikkeling van kernenergie. Sinds 1991 wordt voorrang gegeven aan onderzoek over problemen met betrekking tot de samenleving:

- veiligheid van kerninstallaties;
- stralingsbescherming;
- veilige behandeling en berging van radioactief afval;
- strijd tegen ongecontroleerde proliferatie van splijtbaar materiaal;
- strijd tegen terrorisme.

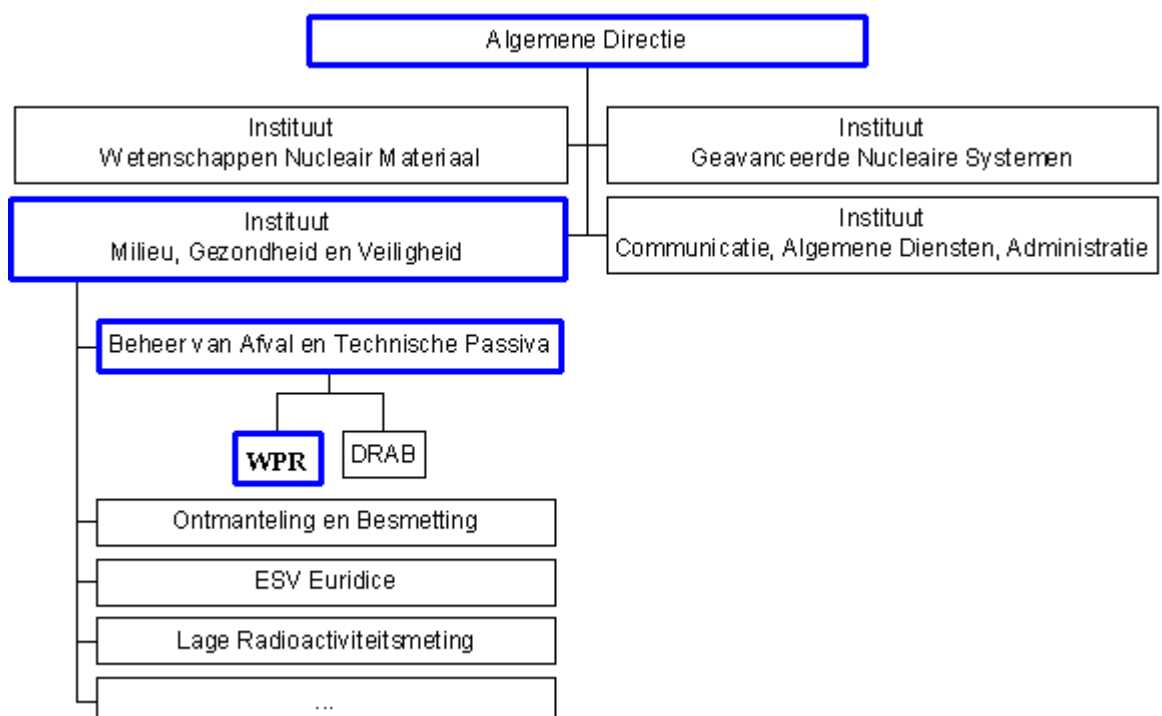
Deze beschikbare kennis en infrastructuur worden ook gebruikt voor dienstverlening aan de industrie en voor opleidingen.

De belangrijkste installaties aan het SCK zijn:

- **BR1** is een luchtgekoelde en grafietgemodereerde reactor met een vermogen van 4 MW. Hij wordt veelvuldig gebruikt als neutronenbron voor activeringsanalyses, dosimetrische ijking, neutronenradiografie en referentie reactorexperimenten.
- **BR2** is één van de krachtigste onderzoeksreactoren ter wereld. Hij wordt gebruikt voor splijtstof- en materiaaltesten voor diverse reactortypes en voor het Europese fusieprogramma. De BR2 is ook een belangrijk onderdeel in de productie van radio-isotopen voor medische en industriële toepassingen en voor siliciumdopering bestemd voor de elektronica-industrie.
- **BR3** was een prototype van drukwaterreactoren (PWR's). Hij werd uitgekozen als Europees pilootproject voor de optimalisering van ontmantelings- en decontaminatietechnieken.
- Het **Laboratorium voor Hoge- en Middelmatige Activiteit (LHMA)** evalueert de gevolgen van bestraling op materialen die gebruikt worden in huidige en toekomstige nucleaire installaties.

- Het **HADES**-laboratorium bevindt zich 225 m onder de grond en dient voor de studie van kleilagen als potentiële geologische opslagplaats voor langlevend hoogradioactief afval.
- De nulenergie-installatie **VENUS** maakt een gedetailleerde analyse van kernconfiguraties mogelijk, inclusief MOX en splijtstoffen met hoge versplijtingsgraad. Hij wordt intensief gebruikt voor de validatie van de kernconfiguratie van reactoren en kritische codes. Deze installatie wordt momenteel aangepast om andere proeven in uit te voeren voor GUINEVERE.
- Het **nucleaire analyse en chemische laboratoria** meet en evalueert de interne contaminatie van werknemers en bedieners van nucleaire installaties en de contaminatie van de bodem en de voedselketen. De laboratoria ondersteunen ook de onderzoeksreactoren en andere labo's voor destructief en niet-destructief onderzoek van hoogradioactief materiaal.
- **MYRRHA** (momenteel: ontwerpstudie) is een Accelerator Driven Subcritical System (ADS). MYRRHA zal als basis dienen voor het Europese experimentele ADS. Het zal protonen en neutronen leveren voor diverse O&O-toepassingen zoals bij transmutatiestudies.

Dit eindwerk situeert zich binnen de expertisegroep Beheer van Afval en Technisch Passiva (Figuur 2.1), eenheid Waste Processing Research. (WPR).



Figuur 2.1: Organogram.

De voornaamste opdrachten van deze eenheid zijn:

- **Fusie:** onderzoek en optimalisatie van detritiatie technieken toegepast op in experimentele (JET) en toekomstige (ITER) gebruikte materialen (beton, olie, metalen, beryllium, moleculaire zeef materialen, etc.) en onderzoek naar geschikte katalysatoren voor waterzuivering.
- **Decommissioning & Decontamination:** ondersteuning bij de ontwikkeling van chemische processen in het kader van afval minimalisatie en (pre)conditionering, o.a. bij decommissioning en decontaminatie.
- **Afval:** behandeling van alkalimetalen via het SimSan proces en het onderzoek naar opslagvormen voor behandeld natriumafval. [1]

3 Tritium

3.1 *Geschiedenis*

Het isotoop van waterstof met massa twee, deuterium, is in 1932 ontdekt door Harold Urey. Vervolgens werden projecten in de USA en in Groot-Brittannië opgestart om een isotoop van waterstof met massa drie te vinden. Aan de universiteit van Princeton werd gezocht naar natuurlijke bronnen van ^3H terwijl men aan de Cambridge universiteit op zoek ging naar nucleaire reacties waarbij tritium ontstond.

In maart 1934 vond het Cambridge team, onder leiding van Rutherford, bewijs voor het bestaan van een waterstofisotoop met massa drie. Het isotoop werd geproduceerd bij het bombarderen van deuterium met deuteronen. Deuteronen zijn deeltjes die een proton en een neutron bevatten. Ze observeerden de emissie van neutronen en protonen die werd toegeschreven aan de vorming van een isotoop van helium met massa drie en een isotoop van waterstof met massa drie.

Lozier, Smith en Bleakney (Princeton) rapporteerden dat ze positief bewijs hadden gevonden over het bestaan van natuurlijke tritiumbronnen. Beide teams vonden dat tritium stabiel was.

Enkele jaren later, in 1938, observeerde Bonner de vorming van geëxciteerd ^3He bij de desintegratie van deuterium door acceleratie met deuteronen. Bonner suggereerde hierbij dat tritium mogelijk spontaan desintegreert in ^3He en een elektron.

Alvarez en Cornog splitsten later de twee isotopen, geproduceerd volgens Rutherford's methode, en toonden aan dat ^3He stabiel is en dat ^3H radioactief is. Zij vonden ook dat de straling van tritium zeer zwak is en dat het een lange halveringstijd heeft.

De volgende 20 jaar begon tritium zijn opmars te maken als radioactief tracer isotoop. Hier verving tritium het andere waterstofisotoop, deuterium.

De waarde van tritium werd vlug herkend en het gebruik van tritium accelereerde door het vinden van nieuwe technieken om het te meten, vooral door vloeibare scintillatie methodes. Vanaf 1957 was de groei van het gebruik van tritium en tritium gelabelde componenten fenomenaal. Tritium heeft toepassingen in vele gebieden. [2]

3.2 Eigenschappen

De voornaamste eigenschappen van de drie gekende waterstofisotopen zijn samengevat in Tabel 3.1. Isotopen hebben hetzelfde aantal elektronen en protonen, maar verschillen in het aantal neutronen. Ze hebben dus hetzelfde atoomnummer maar een verschillende atoommassa, dit laatste zorgt voor een klein verschil in fysische en chemische eigenschappen.

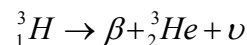
Tabel 3.1: Isotopen van waterstof.

Symbool	Naam	Staat	Atoommassa [u]	Abundantie ^b
¹ H	waterstof, protium	stabiel	1,007825	99,985
² H	zware waterstof, deuterium	stabiel	2,014102	0,0155
³ H	tritium	radioactief	3,016049	0

3.2.1 Tritiumverval

Tritium is een isotoop dat een laag energetische β -straling emitteert. Een β -deeltje is equivalent aan een elektron, enkel de bron van het deeltje is anders. β -Emitterende kernen hebben teveel neutronen. Een neutron emitteert een β -deeltje en hierbij wordt het neutron omgezet naar een proton. [3]

Tritium zal vervallen naar helium volgens volgende reactie:



Het antineutrino reageert niet met materie, daarom wordt het dikwijls weggelaten uit de reactievergelijking.

Als een radioactief isotoop vervalt, daalt het aantal kernelementen. Dit is een toevalsproces. Voor een enkel atoom is niet te voorspellen wanneer deze omzetting zal plaatsvinden. Het is onafhankelijk van uitwendige condities zoals druk en temperatuur. De halveringstijd is de tijd waarna precies de helft van de kernen vervallen is. De halveringstijd voor tritium is 12,43 jaar. Na ongeveer zeven maal de halveringstijd zal er nog minder dan 1% overblijven van het radioactieve isotoop.

^b Abundantie = mate van het natuurlijk voorkomen van een element in de natuur.

De activiteit van een radioactief isotoop wordt weergegeven als het aantal kernen dat vervalft per tijdseenheid. Met behulp van deze definitie kan de formule voor de halveringstijd opgesteld worden, ook de vervalwet genoemd:

$$A = \frac{dN}{dt}$$

$$A_t = A_0 \times e^{-\lambda t} \quad \text{met daarin : } \lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$$

Waarin:

- N = aantal kernen.
- A_0 = initiële activiteit (Bq).
- A_t = activiteit na een bepaalde tijd (Bq).
- t = gemeten tijd (tijdseenheid).
- $t_{1/2}$ = halveringstijd (tijdseenheid).

De SI-eenheid van radioactiviteit is Becquerel (Bq). De activiteit wordt weergegeven in desintegraties per seconde: Becquerel (Bq) = 1 (desintegratie) s^{-1} . Vroeger werd ook wel de Curie als eenheid gebruikt: 1 Curie (Ci) = $3,7 \times 10^{10}$ Bq. [4]

3.2.2 Penetratiediepte van de β -deeltjes uitgezonden bij tritiumverval

De penetratie en absorptie van β -deeltjes in een materiaal zijn belangrijke factoren voor het detecteren van tritium. Aan de hand van deze twee factoren kan inzicht verworven worden over hoe tritium bepaalde materialen degradeert. Een β -deeltje werkt in op materie door te botsen met aanwezige elektronen in het materiaal. Bij iedere botsing verliest het β -deeltje energie (enkele eV). Het elektron wordt van het atoom gestript (ionisatie) of gaat naar een geëxciteerde toestand. De diepte van de penetratie van een β -deeltje is afhankelijk van zijn energie.

Herinner dat tritium vervalft in ${}^3_2\text{He}$, een β -deeltje en een antineutron. De heliumdochter (${}^3_2\text{He}$) is stabiel, maar lichter dan het normale helium (${}^4_2\text{He}$). De energie die vrijkomt bij verval is constant (18,6 keV), maar deze energie is verdeeld over het β -deeltje en het antineutron. Het resultaat hiervan is dat niet alle β -deeltjes dezelfde energie bezitten. De gemiddelde energie is 5,7 keV. Bijgevolg hebben niet alle tritium β -deeltjes dezelfde penetratiediepte in een bepaald materiaal. [4, 5]

Tabel 3.2: Penetratiediepten van een β -deeltje, afkomstig van tritiumverval.

Materiaal	β -energie [keV]	Penetratiediepte [mm]
T ₂ gas, STP ^c	5,7	2,6
T ₂ gas, STP	18,6	32
Lucht, STP	5,7	0,36
Lucht, STP	18,6	4,5
Water, olie, polymeren	5,7	$0,42 \times 10^{-3}$
Water, olie, polymeren	18,6	$5,2 \times 10^{-3}$
Roestvrij staal	5,7	$0,06 \times 10^{-3}$

3.2.3 Chemische vormen

Tritium kan voorkomen in verschillende chemische vormen: HT, HTO en OBT^d. OBT is de gevaarlijkste vorm van tritium voor de mens, HTO in mindere maten en HT is niet echt gevaarlijk voor de mens omdat het nauwelijks wordt opgenomen door het lichaam. HT is in evenwicht met T₂/H₂, het evenwicht ligt in de richting van HT. HTO is het reactieproduct van de evenwichtsreactie tussen T₂O en H₂O.

Evenwichtsreacties:

- $T_2 + H_2 \rightleftharpoons 2 HT$
- $H_2O + T_2O \rightleftharpoons 2 HTO$

Tritium kan gebruikt worden onder HT-vorm. Getritieerd waterstofgas kan opgeslagen worden in gasflessen. T₂ wordt opgeslagen in 'metaalgetters', dit zijn metalen bedden die bestaan uit titanium, zirkonium of uranium. Het tritiumgas kan nadien vrijgelaten worden door het bed op te warmen.

De meest voorkomende component is HTO, dit is getritieerd water. HTO wordt gevormd als HT wordt blootgesteld aan zuurstof of aan waterdamp. Dit kan volgens verschillende reactiemechanismen gebeuren:

Oxidatie:

- $2 HT + O_2 \rightarrow 2 HTO$
- $2 T_2 + O_2 \rightarrow 2 T_2O$

Uitwisselingsreactie:

- $HT + H_2O \rightleftharpoons H_2 + HTO$
- $T_2 + H_2O \rightleftharpoons HT + HTO$

^c STP = druk en temperatuur bij standaardomstandigheden.

^d OBT = Organic Bound Tritium.

Deze reacties worden gekatalyseerd door straling (van nabij tritium in hoge concentraties), warmte of metaalkatalysatoren (palladium en platina). Bijna alle chemische reacties die met waterstof gebeuren, kunnen ook met tritium gebeuren. [5]

3.2.4 Contaminatie

Tritium onder de vorm van HT of HTO, zal gemakkelijk absorberen aan het oppervlak van de meeste metalen en polymeren. Het tritium zal dicht bij het oppervlak blijven tenzij het metaal verwarmd wordt tot hoge temperaturen. Bij kamertemperatuur is permeatie door metaal meestal extreem laag.

De contaminatie kan dan o.a. verwijderd worden door isotopische uitwisseling met water, stoom of met waterstof. Door het metaal te verhitten kan het decontaminatieproces versneld worden. Het metaaloppervlak kan ook verhit worden voor de blootstelling aan tritium, dit zorgt voor een betere bescherming tegen contaminatie.

Bij langdurige blootstelling aan tritium bij hoge druk of hoge temperatuur, kan tritium diep in het metaal dringen. Bij verval van tritium in het metaal kan er een ophoping van het vervalproduct helium ontstaan waardoor de mechanische eigenschappen van het materiaal kunnen veranderen. Het materiaal zal broser worden.

Als tritium geabsorbeerd wordt in een polymeer, zal het gemakkelijk in het materiaal kunnen migreren. HTO migreert sneller in polymeren dan HT. De permeatiesnelheid is afhankelijk van het materiaal en neemt toe bij hogere temperatuur. Polymeren die blootgesteld zijn aan tritium worden snel gecontamineerd. De contaminatie gaat tot diep in de bulk van het materiaal. Waterstofatomen uit het polymeer kunnen door een uitwisselingsreactie vervangen worden door tritium, deze contaminatie is moeilijk niet-destructief te verwijderen. [5]

3.2.5 Biologische effecten

Tritium kan in het menselijk lichaam opgenomen worden door:

- inhalatie,
- ingestie,
- contact.

Tritium komt vooral voor als HT en HTO. Bij inhalatie van HT gas wordt er slechts 0,005% van de activiteit door de longen opgenomen. De opname van HTO is echter zeer groot (bijna 100%) bij inhalatie en ingestie.

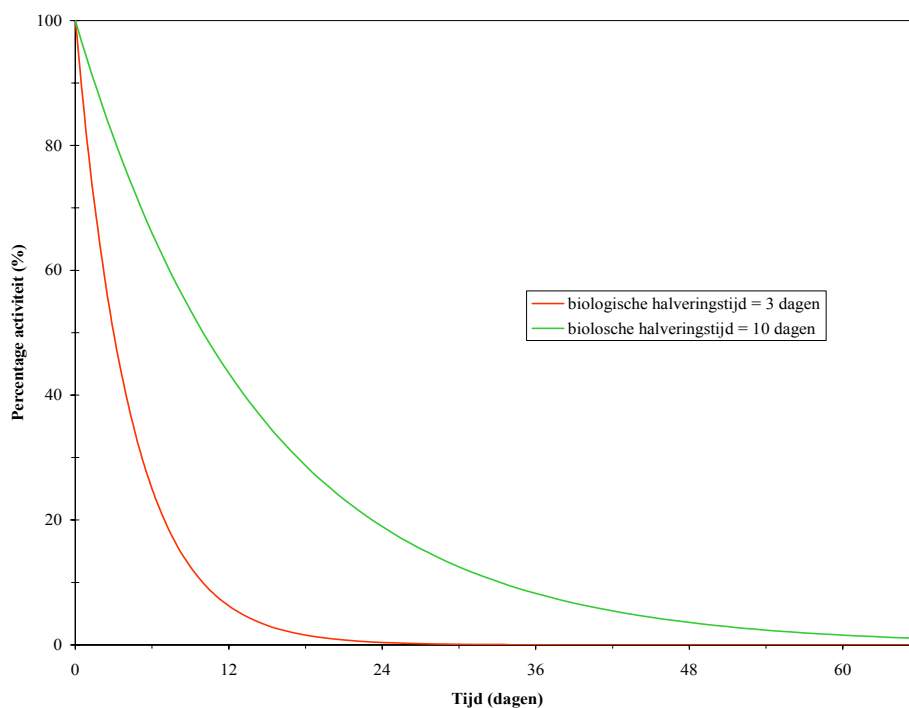
Tritium kan ook het lichaam binnen treden via absorptie door de huid of open wonden. Tritium wordt geabsorbeerd door handschoenen, kleding en metaal. Als dit niet goed

gecontroleerd wordt, kunnen deze gecontamineerde materialen een bron zijn van besmetting als ze in contact met de huid komen.

HTO zal één of twee uur na opname helemaal verdeeld zijn in alle lichaamsvochten. De tijd nodig om de helft van de activiteit van tritium uit het lichaam te verwijderen is de biologische halveringstijd. Deze waarde varieert sterk en is afhankelijk van volgende parameters:

- het metabolisme of met andere woorden de uitscheidingsnelheid van de lichaamsvochten;
- temperatuur;
- vochtinname.

De biologische halveringstijd van tritium bedraagt ongeveer 9,4 dagen. Maar deze tijd kan verkort worden naar 2 à 3 dagen door een grote vochtinname. De tijd kan zelfs gereduceerd worden naar 4 à 8 uur door dialyse. [6]



Grafiek 3.1: Het percentage tritium dat nog in het lichaam aanwezig is, gebaseerd op een halveringstijd van 10 dagen (gemiddelde voor mensen) en een halveringstijd van 3 dagen (bij een verhoogde waterinname).

3.3 Bronnen van tritium

De bronnen van de radionucliden in onze omgeving kunnen in drie groepen ingedeeld worden. De eerste groep omvat de productie van radionucliden door kosmische straling (kosmogene bronnen). De tweede groep zijn radionucliden met een leeftijd vergelijkbaar met deze van de aarde en desintegratieproducten van uranium en thorium (primordiale bronnen).

In de derde groep worden de radionucliden ondergebracht die kunstmatig geproduceerd worden (antropogene bronnen). De eerste twee groepen zijn natuurlijke bronnen. De derde bron is ontstaan door menselijke activiteiten.

In dit onderzoek wordt gesproken over de opslag van tritiumhoudend afval. In de toekomst zullen de fusiereactoren, die nu nog volop in ontwikkeling zijn, voor een grote hoeveelheid tritiumhoudend afval zorgen. Deze reactoren zijn dus ook een bron ‘in wording’.

3.3.1 Natuurlijke bronnen

‘Natuurlijk tritium’ werd eerst ontdekt in atmosferische waterstof door Faltings en Harteck . Later werd aangetoond dat het ook in regenwater aanwezig is (Libby). Het tritium in de atmosfeer vóór de waterstofbomtesten zou ongeveer 300 PBq^e (9 miljoen curie) bedragen. Dit natuurlijke tritium is een resultaat van nucleaire reacties geïnduceerd door kosmische straling in de bovenste lagen van de atmosfeer. Hier botsen snelle neutronen, protonen en deutronen met moleculen en staan zo in voor de productie van tritium.

Voorbeelden van dergelijke reacties zijn:

- ${}^{14}_7N + {}^1_0n \rightarrow {}^3_1H + {}^{12}_6C$
- ${}^{14}_7N + {}^1_1H \rightarrow {}^3_1H + \text{fragmenten}$
- ${}^2_1H + {}^2_1H \rightarrow {}^1_1H + {}^3_1H$

De energetische tritiumatomen, die bij deze reacties geproduceerd worden, worden opgenomen door watermoleculen (door oxidatie of uitwisseling). Hierdoor komt het tritium als regen op het aardoppervlak terecht. [4]

3.3.2 Antropogene bronnen

Het grootste deel van tritium is afkomstig van antropogene bronnen. Bij deze bronnen ontstaat het tritium door menselijke activiteit.

Wapens

Vanaf de eerste kernexplosie in 1945 tot het verbod op bovengrondse kernproeven in 1963 werden er elk jaar verschillende radionucliden waaronder tritium in de atmosfeer geïnjecteerd bij wapentesten. Vooral een reeks waterstofbomtesten vanaf 1954 waren verantwoordelijk voor de tritiumtoename in de atmosfeer. In 1982 bevindt er zich nog 2370 PBq tritium afkomstig van de waterstofbomtesten en 5680 PBq tritium afkomstig van atoombomtesten, in de atmosfeer. Dit betekent dat er nu, in 2008, nog 1869 PBq tritium aanwezig is in de atmosfeer. De kernproeven resulteerden in een radioactieve contaminatie van het milieu.

^e 1 PBq = 10¹⁵ Bq.

Fissiereactoren

Tritium kan ook geproduceerd worden in een LWR (light water reactor), die gebruik maakt van fissiereacties om energie op te wekken. Fissie ontstaat wanneer de kern van een zwaar atoom, zoals uranium of plutonium, door een neutron geraakt wordt en in twee splitst. Bij deze splitsing komen energie en nieuwe neutronen vrij, die dan op hun beurt weer andere atomen kunnen splitsen. Tritium wordt als bijproduct geproduceerd bij absorptie van neutronen door boor in de controlestaven. Tritium kan ook geproduceerd worden in het fissieproces of wanneer neutronen worden geabsorbeerd door andere chemicaliën (lithium) in het koelwater. Het grootste gedeelte van het geproduceerde tritium blijft in de brandstofelementen zitten, een deel zal diffunderen in het omhulsel.

Bij de HWR (heavy water reactor) zal tritium vooral ontstaan door reactie van neutronen met deuterium (koelmiddel, ‘zwaar water’).

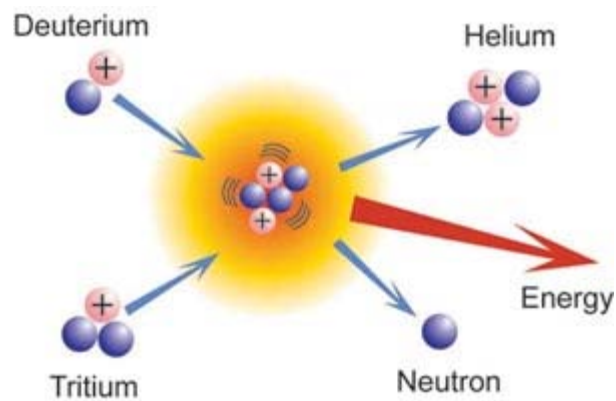
Tabel 3.3: Productie van tritium in kernreactoren.[7]

Reactor type	Tritium lozingen	
	[TBq/Gwe.a]	[g T ₂ /(GWe.a)]
LWR	700	2
HWR	90 000	250

Fusiereactoren

Kernfusie is het samensmelten van atoomkernen tot een nieuwe kern. Dat is niet eenvoudig door hun gelijksoortige lading, waardoor de kernen elkaar afstoten en een mogelijke samensmelting of fusie belemmeren. Fusiereacties kunnen tot stand gebracht worden door de kernen voldoende energie mee te geven zodat ze die wederzijdse afstoting (Coulomb barrière) overwinnen. Kernfusie is het proces dat plaatsvindt in de zon. Daar treedt fusie op bij een relatief lage temperatuur van 15 miljoen graden omdat de druk er heel hoog is. Op aarde zal die hoge druk niet behaald kunnen worden. Er zal een temperatuur bereikt moeten worden die 10 maal hoger is dan de temperatuur op de zon: 100 tot 200 miljoen graden. [8] Bij zulke hoge temperaturen vormt materie een plasma, een heet gas van geladen deeltjes. Een plasma kan worden ingesloten in een ringvormige reactor, waarin het met magneetvelden wordt vastgehouden.

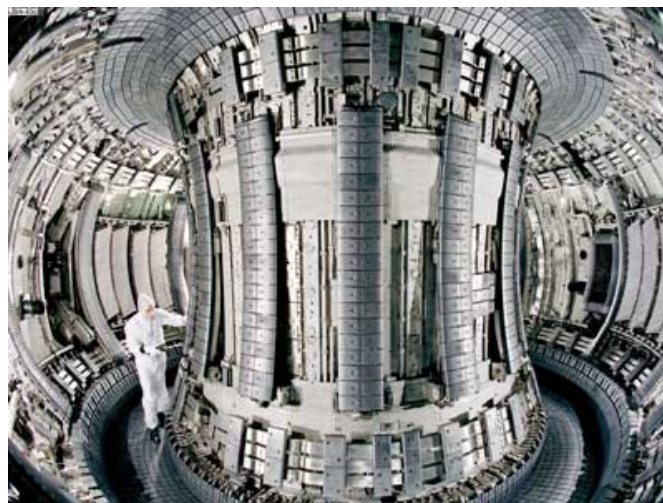
Voor deze fusiereacties wordt gebruik gemaakt van lichte kernen. De deuterium-tritium reactie is het makkelijkst te realiseren.



Figuur 3.1: Deuterium-tritium fusiereactie.[9]

De Joint European Torus (JET) bij Oxford, Groot-Brittannië, is 's werelds grootste fusie-experiment. JET kan als enige experimentele reactor ter wereld met de toekomstige fusiebrandstoffen werken, deuterium en tritium. In 1997 leverde JET 16 megawatt fusievermogen, wat nog steeds het wereldrecord is. JET is zeer geschikt om materialen te testen voor de wand van het plasmavot, en om onderzoek naar verwarming en meet- en regelmethoden uit te voeren onder realistische fusie-condities.

De volgende grote stap in het wereldwijde fusie-onderzoek is ITER. ITER is het grootste wetenschappelijke project ter wereld, en wordt momenteel gebouwd in Cadarache in Zuid-Frankrijk. Het doel van ITER is te demonstreren dat fusie-energie technisch en wetenschappelijk realiseerbaar is. Om dit aan te tonen moet ITER condities bereiken waarbij 500 megawatt fusievermogen gedurende langere tijd wordt opgewekt. ITER zal tien maal meer energie opleveren dan er wordt gebruikt. In ITER zullen ook experimenten worden uitgevoerd met componenten en technologieën die essentieel zijn voor een toekomstige industriële fusiecentrale.



Figuur 3.2: JET.

ITER moet over 15 jaar in bedrijf komen, de bouwkosten bedragen ongeveer 4,7 miljard Euro. De huidige partners in het wereldwijde ITER-project zijn de Europese Unie, Japan, China, de Russische Federatie, de VS, India en Zuid Korea. Europa heeft een leidende rol in dit project, en zal ongeveer 50% van de kosten voor haar rekening nemen. [10]

3.4 Tritiummeting: vloeistofscintillatietelling

Vloeistofscintillatiemeting (Liquid scintillation counting, LSC) is een methode om de straling van β -emitterende nucliden te meten. Deze methode zal gebruikt worden bij de tritiummetingen in het praktische deel van dit werk, daarom wordt hier wat meer uitleg gegeven over deze techniek. [11, 12]

Scintillatietellers detecteren de lichtverschijnselen die door de straling in een geschikt medium worden opgewekt. Een andere methode berust op het bepalen van de stroompuls die door de gevormde ionen in een elektrisch veld wordt veroorzaakt (o.a. G.M. tellers).

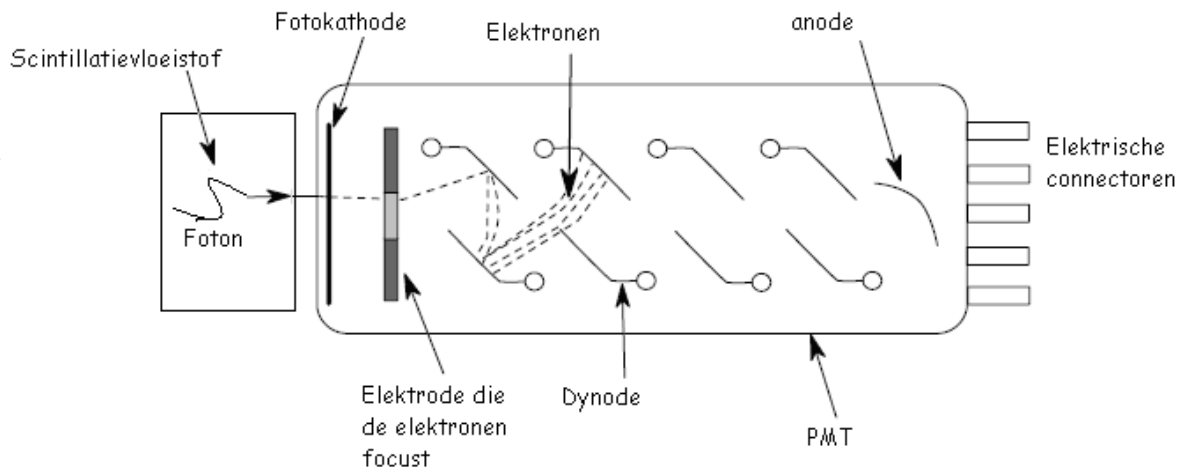
De oudste scintillatiemethode steunt op het tellen van de lichtvlekjes veroorzaakt door alfadeeltjes op een zinksulfidescherm (spinharscoop, W. Crookes, 1903). Door de ontwikkeling van de Geiger-Müller buis raakte deze omslachtige methode echter vlug buiten gebruik. Na de Tweede Wereldoorlog werden scintillatietellers voor gammastraling met NaI(Tl)-kristallen op punt gesteld.

Men ontdekte dat in sommige organische kristallen (naftaleen, antracene, stilbeene) door β -straling lichtverschijnselen werden opgewekt. Onderzoek leerde dat sommige stoffen deze eigenschap ook in oplossing behielden. Zo ontstond de vloeistof scintillatietechniek (LSC) die sindsdien een uitgebreide toepassing heeft gevonden.

3.4.1 Principe

Bij LSC wordt het te onderzoeken radionuclide gemengd met een oplossing van een geschikte organische stof, de scintillator. De uitgezonden straling verwekt lichtflitsen in de oplossing die via een lichtgevoelige fotonenopnemer (fotonenvermenigvuldiger, PM) worden gedetecteerd. In een PM buis worden de elektronen, vrijgemaakt uit de lichtgevoelige kathode, versneld en naar een reeks dynodes gevoerd. Uit elke dynode worden een aantal bijkomende secundaire elektronen vrijgemaakt.

De uiteindelijke anodestroom zal een veelvoud zijn van de oorspronkelijke stroom te wijten aan primaire elektronen afkomstig van de kathode. De intensiteit van het uitgezonden licht en dus ook de hoogte van de afgeleverde elektrische puls is evenredig met de energie van de gemeten straling.



Figuur 3.3: Photomultipliertube, fotonenvermenigvuldiger (PMT,PM).

LSC kan gebruikt worden voor α - en β -straling. De meeste toepassingen liggen echter in het tellen van β -straling.

Een β -deeltje kan maar in de vloeistof doordringen totdat al zijn energie afgegeven is. Typisch voor β -deeltjes is dat ze zeer snel hun energie afgeven. Deze energie kan geabsorbeerd worden door het medium in drie mogelijke vormen: warmte, ionisatie en excitatie. Dus een deel van de β -energie wordt opgenomen door solventmoleculen die daardoor in de geëxciteerde toestand komen.

3.4.2 Samenstelling van de scintillatievloeistof

Het scintillatiemengsel (cocktail) bestaat uit de verschillende componenten:

- oplosmiddel,
- primaire scintillator,
- secundaire scintillator,
- emulgator.

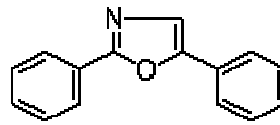
Het oplosmiddel

Het oplosmiddel is meestal een aromatische vloeistof: toluen, xyleen, dioxaan of di-isopropylnaftaleen.

De primaire scintillator (PS)

Vele organische scintillators zijn gebaseerd op organische moleculen met symmetrische eigenschappen die aanleiding geven tot een π -structuur. De π -structuur maakt het mogelijk om energie te absorberen door een elektron te exciteren.

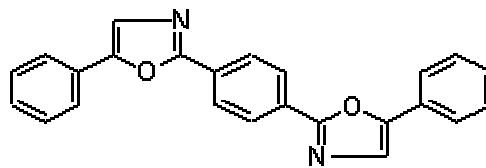
De meest gebruikte primaire scintillator is PPO of 2,5-difenyloxazool.



Het licht uitgezonden door deze moleculen heeft een golflengte die net iets te laag is (350-400nm) om de maximale gevoeligheid van de fotonenvermenigvuldiger te bereiken.

De secundaire scintillator (SS)

Meestal wordt hier gebruik gemaakt van POPOP of 1,4-Bis(5-fenyloxazol-2-yl)benzeen.



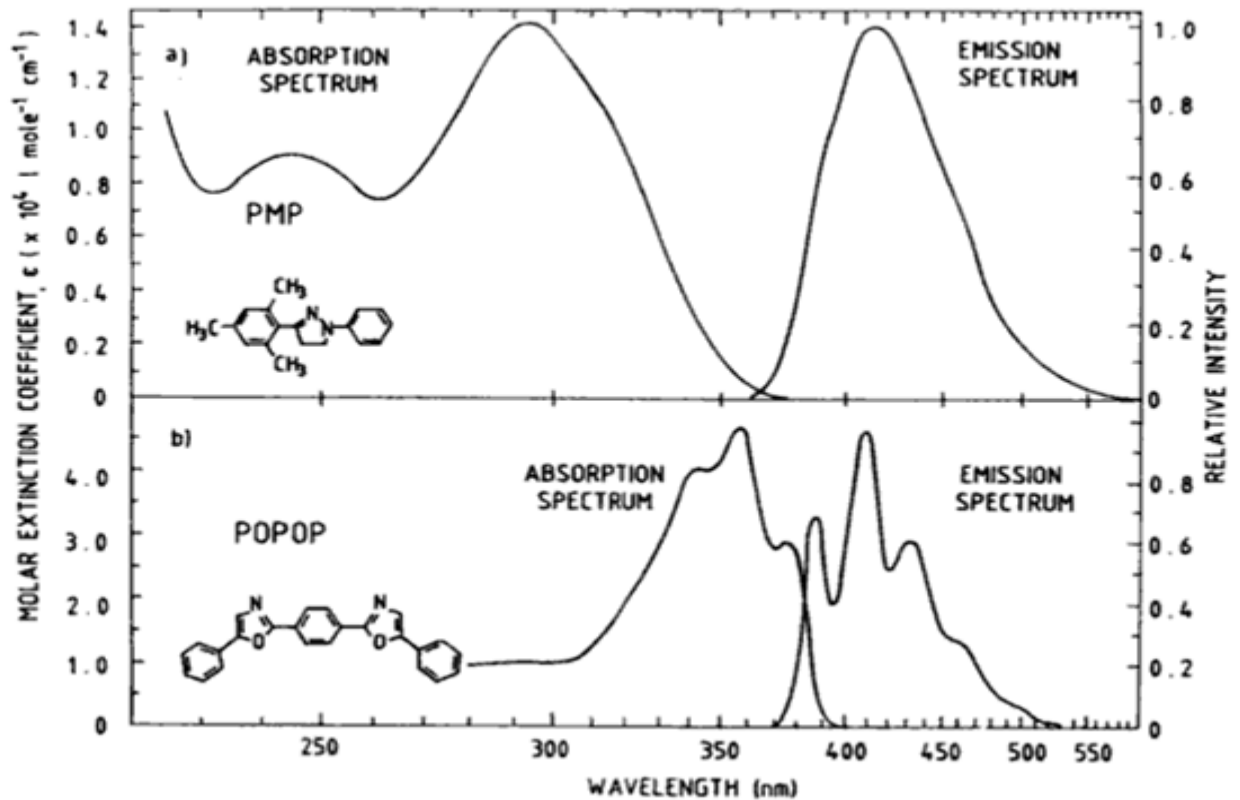
POPOP zendt licht uit bij een golflengte die samenvalt met de hoogste gevoeligheid van de PM ($\pm 420\text{nm}$). Een SS wordt dan ook wel eens een 'wavelength shifter' genoemd. (Zie Grafiek 3.2)

De emulgator

Een emulgator is aanwezig in scintillatiecocktails die geschikt zijn voor zowel waterige als niet-waterige oplossingen. Een voorbeeld van een emulgator is Triton X 100.

Het omzetten van de energie van de invallende straling in licht (fotonen) is een ingewikkeld proces dat in verschillende stappen gebeurt. De invallende β -straling exciteert een solventmolecule. Een aangeslagen solventmolecule geeft zijn energie af aan de primaire scintillator die op zijn beurt in de aangeslagen toestand komt. Als de energie van een geëxciteerd PS molecule wordt afgegeven aan een SS molecule (fluorescerende molecule) wordt hierbij de elektronenwolk verstoord van de SS molecule, waardoor het naar een geëxciteerde toestand overgaat. Als de geëxciteerde elektronen van de SS molecule terug naar de grondtoestand keren, resulteert dit in het uitstralen van een foton (UV-licht). Dit UV-licht wordt geabsorbeerd door de fluormoleculen, die blauw licht uitstralen totdat ze terug in de grondtoestand zijn.

Bij nucleair verval worden er ongeveer 10 fotonen per keV geproduceerd. De energie wordt afgegeven in de orde van 5 nanoseconden. Het totale aantal uitgestraalde fotonen vormt de scintillatie. De intensiteit is evenredig met de energie van het β -deeltje.



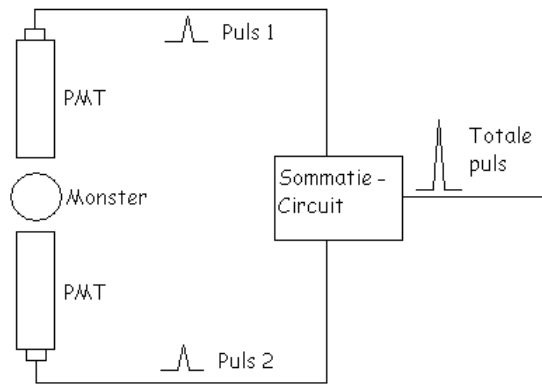
Grafiek 3.2: Absorptie- en emissiespectrum van POPOP en PMP. [13]

3.4.3 Doving en quenching

Sommige factoren kunnen de opbrengst aan fotonen ongunstig beïnvloeden waardoor de telefficiëntie afneemt. De term voor dit verschijnsel is doving of quenching. Het is vooral belangrijk voor β -straling met lage energie. Doving kan te wijten zijn aan de scintillator zelf, maar ook vreemde stoffen kunnen aanleiding geven tot doving.

3.4.4 Opbouw van een LSC toestel

Het telflesje wordt tussen twee PM buizen opgesteld (zie Figuur 3.4), waarvan het signaal naar een coïncidentieschakeling wordt gevoerd. Hier wordt enkel voor pulsen die op beide PM buizen voorkomen een poort naar de teller geopend. Op deze manier vermindert men het achtergrondsignaal dat onder meer te wijten is aan elektronische ruis.



Figuur 3.4: Schematische voorstelling van een LSC toestel.

3.5 Bescherming tegen de gevaren van tritium [5]

3.5.1 Labojas

Labojassen worden gedragen om de kleding te beschermen. De bescherming die labojassen werkelijk bieden is echter beperkt. Ze zijn wel effectief om huidcontact met besmette oppervlakken te voorkomen. Meestal wordt gebruik gemaakt van stoffen jassen, maar ook papieren jassen kunnen gebruikt worden.

3.5.2 Schoenovertrekken

Om bescherming te bieden tegen de verspreiding van contaminatie worden schoenovertrekken gebruikt. Schoenovertrekken kunnen persoonlijke bescherming bieden, maar zijn vooral bedoeld om geen radioactieve stoffen te verspreiden buiten de warme zones.

3.5.3 Handschoenen

Veelal zijn de handen en voorarmen van de laboranten zeer kwetsbaar voor contact met tritium besmette oppervlakken. Om dit te vermijden moeten geschikte handschoenen geselecteerd worden. De meest gebruikte handschoenen bestaan uit PVC of latex, zijn kort en beschermen tegen lichte contaminatie. Voor zwaarder gecontamineerde materialen kunnen twee paar handschoenen over elkaar gedragen worden of kan er een dikker type gekozen worden.

3.5.4 Handschoenkast

Handschoenkasten voor tritium worden gemaakt uit roestvrij staal of aluminium met vensters uit glas of polycarbonaat. De handschoenen bestaan uit butylrubber of neopreen. In de handschoenkasten wordt een onderdruk (200-300 Pa) aangelegd om te vermijden dat tritium zou ontsnappen bij een lek. Het gas dat uit de handschoenkast gezogen wordt kan eventueel

gedetritieerd worden om lozing naar de atmosfeer te beperken. Detritiëren kan gebeuren door HT om te zetten in HTO en het HTO op te vangen op een moleculaire zeef of HT kan opgevangen worden op een 'getter'. De atmosfeer in de handschoenkast kan lucht, stikstof, helium of argon zijn afhankelijk van de activiteiten in de kast. Toch kunnen zelfs bij het gebruik van een inerte atmosfeer kleine hoeveelheden vocht en zuurstof aanwezig zijn zodat vrijgekomen tritium vrijwel steeds tot HTO zal oxideren. Het relatieve gevaar van HTO is dat het door de rubberen handschoenen kan diffunderen. Daarom zal bijna altijd nog een extra paar handschoenen aangetrokken worden.

3.5.5 Trekkast

Om reparaties of onderhoud uit te voeren waarbij het materiaal niet in een handschoenkast kan gebracht worden, kan een trekkast uitweg bieden. Voor werk met lage activiteiten aan tritium voldoet een trekkast vaak.

3.5.6 Procescel

Grote installaties die moeten afgeschermd worden van de buitenwereld worden ook in een procescel gebouwd.

3.5.7 Ventilatie

De lucht in het laboratorium wordt constant verversd door een ventilatie, ongeveer dertig maal per uur. Alle vrijgekomen tritium wordt zo onmiddellijk afgezogen zodat de veiligheid van het personeel gewaarborgd blijft.

3.5.8 Beschermingspakken

Voor onderhoud en installatieoperaties met grote hoeveelheden tritium in de omgeving worden pakken gedragen met luchttoevoer. Deze pakken bestaan uit plastic en omsluiten het gehele lichaam. Het plastic dat gekozen wordt moet zoveel mogelijk weerstand bieden tegen permeatie van HTO door het pak.

3.5.9 Controle labolucht

Om eventuele besmetting van de lucht in het laboratorium in een vroegtijdig stadium op te sporen, wordt er op strategische plaatsen in het lab permanent lucht aangezogen. Deze lucht wordt voor analyse naar een proportionele teller geleid. Wanneer de gemeten activiteit een ingestelde drempelwaarde overschrijdt zal een alarm weerklinken en dient het lab ontruimd te worden.

4 Opslag van tritiumhoudend afval

4.1 Berging van radioactief afval

De Nationale Instelling voor Radioactief Afval en Verrijkte Spleijstoffen (NIRAS) is belast met het beheer van het radioactief afval in België en met de inventaris van alle installaties en sites die radioactieve afvalstoffen bevatten. Producenten van radioactief afval hebben een meldingsplicht bij NIRAS en moeten een overeenkomst afsluiten voor het beheer ervan. Alvorens zulk afval kan worden geborgen, dient het voorbehandeld of ‘geconditioneerd’ te worden waarbij het volume zoveel mogelijk gereduceerd wordt.

Een typische aanpak is als volgt:

- Vloeibaar afval krijgt een chemische of thermische behandeling.
- Vast brandbaar afval wordt bij een temperatuur van 900 °C verbrand en tot as verwerkt.
- Niet-brandbaar afval wordt voor zover het persbaar is onder zeer hoge druk (2000 ton) geperst.
- Niet-persbaar afval wordt versneden, zodat het in standaardvaten kan worden verzameld.

Het resultaat van de voorbehandeling wordt in cement, bitumen of glas vastgezet en in vaten ingesloten om verspreiding te voorkomen.

België stortte in de periode 1967-1982, net als vele andere landen, radioactief afval in zee. In totaal werd 15765 m³ geconditioneerd laagactief en radiumhoudend afval in de Noord-Atlantische Oceaan gedumpt op een diepte van 4000 m. In 1982 stopte België vrijwillig met deze activiteit, maar het ondertekende pas in 1993 de Conventie van Londen die een definitief verbod op zeeberging inhield. Sinds 1983 wordt dit soort afval opgeslagen bij Belgoprocess in Dessel.

Voor de berging en het beheer op lange termijn wordt het radioactieve afval ingedeeld op basis van de halveringstijd:

- Categorie A: laag- en middelactief kortlevend afval; voornamelijk β - en γ -stralers met korte halveringstijden (< 30 jaar) en lage stralingsintensiteit.
- Categorie B: langlevend afval; voornamelijk afval besmet met alfastralers met lange halveringstijden in concentraties die te hoog zijn voor categorie A; bevat ook wisselende hoeveelheden β - en γ -stralers;
- Categorie C: hoogactief afval; met warmteafgifte > 20 W/m³.

De basisprincipes waaraan een bergingsinstallatie voor radioactief afval moet voldoen, zijn:

- Bescherming van de mens en het milieu verzekeren door het radioactief afval vooraf te immobiliseren en nadien voldoende lange tijd uit het leefmilieu te isoleren;
- Beperking van de lasten voor toekomstige generaties door op termijn een passieve bescherming te bieden, bedoeling is een evenwichtige verdeling te krijgen van de lusten en de lasten verbonden aan kernenergie tussen de opeenvolgende generaties.

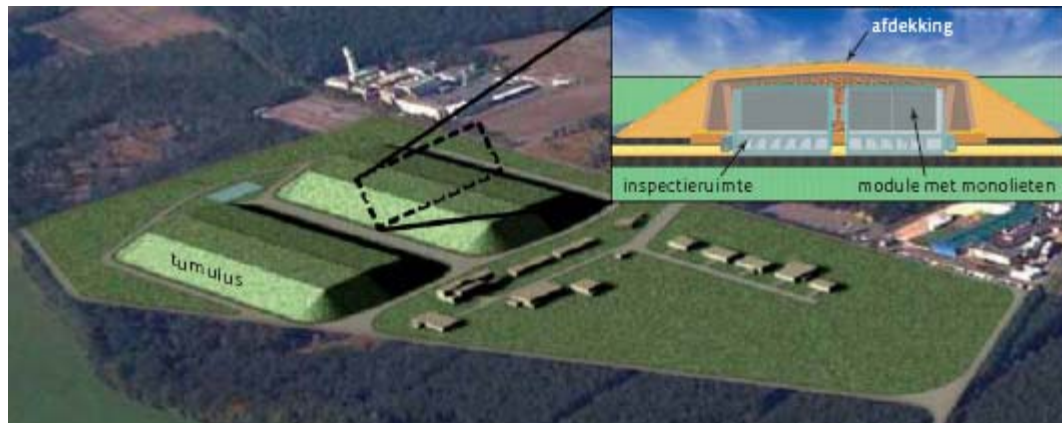
4.1.1 Oppervlakteberging voor kortlevend radioactief afval (categorie A)

Bij oppervlakteberging wordt het afval van categorie A op een zodanige manier ingesloten en afgezonderd dat mens en milieu beschermd zijn, zowel gedurende de periode van 200 à 300 jaar tijdens dewelke er actief toezicht van de berging voorzien wordt, als na deze periode. Onze nakomelingen moeten na de sluiting van de berging in tegenstelling tot bijvoorbeeld tijdelijke opslag niet meer actief tussenkomen om de veiligheid te garanderen. Oppervlakteberging wordt reeds op verschillende plaatsen in de wereld toegepast, onder meer in Frankrijk, Spanje en Japan. Het categorie A-afval zal in Dessel in modules boven de grond geborgen worden, waarbij deze modules zo ingericht worden dat ze op termijn op een veilige manier gesloten kunnen worden zodat geen actieve tussenkomst meer vereist is om de veiligheid te garanderen. Dat heet een ‘oppervlakteberging’.

Het afval wordt, al dan niet eerst verpakt in stalen vaten van 400 liter, in een betonnen kist geplaatst en opgevuld met cementmortel. Het geheel wordt monoliet genoemd. Deze monoliet heeft twee functies: afscherming bieden tegen de radioactieve straling en insluiting van de radioactieve elementen. De monolieten met het afval worden in grote betonnen modules geplaatst. In het totaal zijn 40 bergingsmodules voldoende om al het categorie A-afval te bergen. Ook deze bergingsmodules isoleren het afval van mens en milieu.

Er zal een toegankelijke inspectieruimte onder de modules worden voorzien. In deze ruimte kan men met het blote oog de onderkant van de modules controleren en ingrijpen als er eventueel barsten of lekken zouden zijn. Een netwerk van leidingen vangt al het water op dat zou kunnen binnensijpelen in de bergingsinstallatie. Rond de bergingsite worden ook peilbuizen geplaatst. Zo kan men de toestand van het grondwater opvolgen.

Iedere module krijgt een dak uit staal. Dit dak beschermt tegen weer en wind tijdens het opvullen van de modules met afval. Toekomstige generaties zullen beslissen wanneer de dakstructuur zal worden vervangen door een definitieve afdekking. Deze afdekking bestaat uit verschillende materialen, zoals zand, klei, grind, beplanting... Het vormt een soort van waterdicht ‘deksel’ dat moet beletten dat regenwater in contact komt met de betonnen modules en met het radioactief afval. De mogelijkheid bestaat om gedurende 200 tot 300 jaar de monolieten met het afval terug uit de berging te halen. [14]



Figuur 4.1: Inplanting van het STOLA-ontwerp voor oppervlakteberging in Dessel.

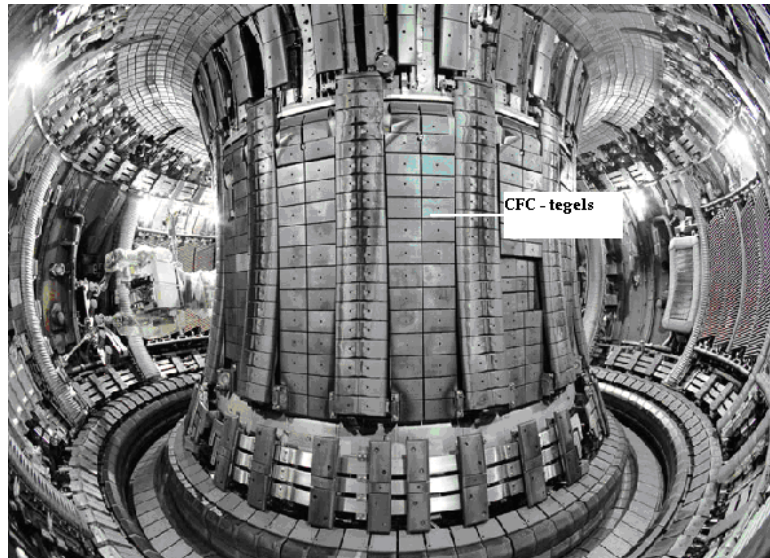
4.2 Vaten voor opslag van tritiumhoudend afval

Bij de ontmanteling van fusiereactoren zoals JET en ITER zal al het materiaal dat in contact is gekomen met de brandstof opgeslagen moeten worden als tritiumafval. Hiervoor werd reeds een ontwerp gemaakt maar er is nog geen onderzoek over gebeurd. Het voorstel houdt in om een afvalvat te maken van 2m. Hierin zou nog een ander vat komen met het eigenlijke afval, deze moet dan verzegeld in het grote vat komen. Dit allemaal om lekken te vermijden. Voor het opbouwen van een afvalvat zal waarschijnlijk RVS 316L gebruikt worden en de wanden zullen een dikte van 6 mm hebben.

De afdichting van het afvalvat zou op verschillende manieren kunnen gebeuren, onder andere door lassen of door het deksel met bouten dicht te draaien. Deze afdichting mag door de jaren heen zijn dichting niet verliezen want het vat moet dicht blijven zo lang het afval dient opgeslagen te worden. De maximale ontsnappingsnelheid van tritium uit het vat naar de omgeving mag de limiet van 0,96 Bq/dag niet overschrijden. (NIREX disposal requirements and road requirements)

Bij JET zijn het de CFC^f-tegels die in het vat terecht moeten komen, dit zijn tegels afkomstig uit de fusiereactor, zie Figuur 4.2. De tegels bevonden zich in het vacuümvat tussen 1996 en 2004 en hebben de twee de grote experimenten in JET meegemaakt. Er is geschat dat iedere tegel ongeveer 2,1 GBq bevat. De afmetingen van de tegels zijn de volgende: 400 mm × 150 mm × 400 mm. De tegels bevatten tritium, maar verwacht wordt dat het tritium niet gelijk verdeeld is over de tegel.

^f CFC = Carbon Fibre Composite



Figuur 4.2: CFC-tegels in de JET-reactor.

Bij de ITER fusiereactor worden er andere tegels gebruikt, namelijk berylliumtegels. De neutronen die vrijkomen bij de fusiereactie tussen deuterium en tritium zullen reageren met de buitenste laag van de berylliumtegels, hierdoor kunnen verschillende vervalreacties plaatsvinden waarbij tritium als eindproduct gevormd wordt. Door dit verschijnsel aan de wand van de tegels ontstaat er een film op de tegels. Deze film komt ook voor bij CFC-tegels maar is meer uitgesproken bij berylliumtegels. Er werd geschat hoeveel tritium er aanwezig zou zijn in de berylliumtegels uit ITER. In de bulk zou tussen 3,0 en 21 g T/ton Be aanwezig zijn, dit betekent een radioactiviteit van ongeveer 1,1 à 7,4 GBq/g. In de afzetlaag zou er 200 à 2000 keer meer tritium aanwezig zijn, dit gaat over $3,31 \times 10^3$ g T/ton Be of een radioactiviteit van 1,2 TBq/g. In ITER zullen voor de bekleding van de binnenwand ongeveer 3620 tegels nodig zijn, samen wegen ze 2500 kg.

Er zijn ook berekeningen gebeurd rondom een toekomstig project, de DEMO^g reactor. Deze reactor zal tegels bevatten die hoofdzakelijk uit beryllium bestaan, maar verder ook nog onzuiverheden kunnen bevatten. De tegels wegen $3,06 \times 10^5$ kg. Er werd een schatting gedaan dat na 20000 h bij een fusievermogen van 2200 W de berylliumtegels $4,38 \times 10^3$ g tritium zullen bevatten. [15]

De afvalvaten moeten een mogelijkheid geven om deze verschillende tegels in op te slaan.

4.2.1 Druk in het afvalvat

Hierop volgt een vereenvoudigde, theoretische berekening van de druktoename in een vat om tritiumafval in op te slaan. Het gaat hier om tritiumafval in de vorm van tegels die uit JET afkomstig zijn.

^g DEMONstration Power Plant

Enkele gegevens:

- Volume box = 4,4 m³;
- Volume tegel = 2,4 l (40 cm × 15 cm × 4 cm = 2400cm³);
- Activiteit per tegel = 2,1 GBq;
- Tritiumrelease in vat = 6,8 GBq/dag. [16]

Tritiumrelease uit tegels

Om het eenvoudig te houden wordt ongebonden tritiumgas gebruikt in de berekeningen (T) en worden de berekeningen uitgevoerd bij kamertemperatuur.

$$N = \frac{A}{\lambda} = \frac{A}{\ln 2} T_{1/2}$$

$$N = \frac{6,8 \cdot 10^9 \text{ atomen} / \text{s} / \text{dag} \times 12,34 \text{ jaar} \times 365 \text{ dagen} / \text{jaar}}{\ln 2}$$

$$N = 4,42 \cdot 10^{13} \text{ atomen} / \text{s}$$

Hieruit kan dan het aantal mol tritium dat vrijkomt per seconde, berekend worden:

$$N = \frac{4,42 \cdot 10^{13} \text{ atomen} / \text{s}}{6,02 \cdot 10^{23} \text{ atomen} / \text{mol}} = 7,34 \cdot 10^{-11} \text{ mol} / \text{s}$$

Uit de tegels komt $7,34 \cdot 10^{-11}$ mol tritium per seconde vrij.

Volume vat

Stel dat het vat voor 50% gevuld is met tegels.

$$V_{\text{gevuld}} = 0,50 \times 4,4 \text{ m}^3 = 2,2 \text{ m}^3$$

Hieruit kan de hoeveelheid tegels berekend worden.

$$\text{Aant. tegels} = \frac{2200 \text{ l}}{2,4 \text{ l}} = 917 \text{ tegels}$$

Activiteit in het vat

$$A = 917 \text{ tegels} \times 2,1 \text{ GBq} / \text{tegel} = 1926 \text{ GBq}$$

De totale activiteit in het vat bedraagt 1926 GBq.

Tritiumverval

Tritium vervalst naar helium en dit zal uit de tegels migreren naar de vrije ruimte.

$$\text{mol He} / \text{s} = \frac{1926 \cdot 10^9 \text{ atomen} / \text{s}}{6,02 \cdot 10^{23} \text{ deeltjes} / \text{mol}} = 3,20 \cdot 10^{-2} \text{ mol} / \text{s}$$

Totale gasproductie

Tot. gasproductie = tritiumrelease uit tegels + helium afkomstig van tritiumverval

$$\text{Tot. gasproductie} = (7,34 \cdot 10^{-11} + 0,32 \cdot 10^{-11}) \text{ mol} / \text{s} \times 3600 \text{ s} / \text{h} \times 24 \text{ h} / \text{dag}$$

$$\text{Tot. gasproductie} = 6,62 \cdot 10^{-6} \text{ mol} / \text{dag}$$

In totaal zal er dus $6,62 \cdot 10^{-6}$ mol gas per dag geproduceerd worden. Dit houdt zowel tritium als helium in.

Druktoename in het vat

De druktoename in het vat kan berekend worden via de ideale gaswet. (V = vrij volume in het vat)

$$p = \frac{N \times R \times T}{V}$$

$$p = \frac{6,62 \cdot 10^{-6} \text{ mol} / \text{dag} \times 8,31 \text{ J} / \text{mol} \cdot \text{K} \times 293 \text{ K}}{2,2 \text{ m}^3}$$

$$p = 7,33 \cdot 10^{-3} \text{ Pa} / \text{dag}$$

Dit zou betekenen dat er na $10 \times T_{1/2}$ jaar (= 120 jaar) 621 Pa druk zou opgebouwd worden. Het gaat hier om een overdruk als er verondersteld wordt dat de box onder atmosferische omstandigheden wordt geladen. De druk in het vat is dan na 100 jaar 101,92 kPa, dit is niet veel hoger dan de atmosferische druk. Als ervan uit gegaan wordt dat een deel van het tritium ontsnapt door permeatie door de wanden, dan kan er verondersteld worden dat de drukstijging doorheen de jaren in het afvalvat, te verwaarlozen is.

5 Afdichtingen

5.1 Inleiding

De testen zullen op verschillende soorten afdichtingen uitgevoerd worden, om zo te kunnen concluderen welke afdichting de meest geschikte is. Er worden testen uitgevoerd op:

- o-ringen vervaardigd uit kunststof,
- metalen c-ringen met een coating.

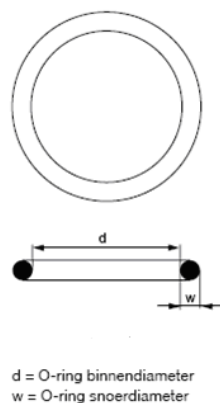
5.2 Elastomere o-ringen [17]

5.2.1 Afdichtingprincipe

Wat is een o-ring?

Een o-ring is een cirkelvormig afdichtingselement met een doorsnede die eveneens cirkelvormig is. Aan deze cirkelvormige doorsnede heeft dit element zijn naam te danken. De meeste o-ringen zijn vervaardigd uit een elastomeer. Het gebruik van andere kunststoffen is ook mogelijk, bv. PTFE, maar bij deze o-ringen is het afdichtingsprincipe verschillend.

Een o-ring moet beschouwd worden als een indrukbare, viskeuze vloeistof die een zeer hoge oppervlaktespanning heeft.

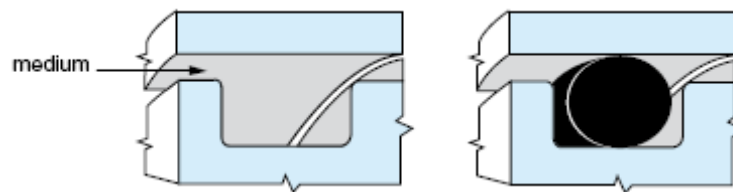


Figuur 5.1: O-ring bovenaanzicht en doorsnede.

Hoe werkt een o-ring?

Door de totale constructie van de o-ring en het af te dichten object, vormt de o-ring als het ware een "blokkade" tussen de twee ruimten. Hierdoor kan het af te dichten medium de o-ring niet passeren. Dit afdichtingsconcept kan zowel toegepast worden in dynamische als in statische toepassingen. In dynamische toepassingen, waarbij de o-ring wordt ingezet tussen

twee bewegende delen, kan de o-ring gebruikt worden bij zowel schuivende als draaiende bewegingen. De o-ring is dus een zeer universeel inzetbaar afdichtingselement.



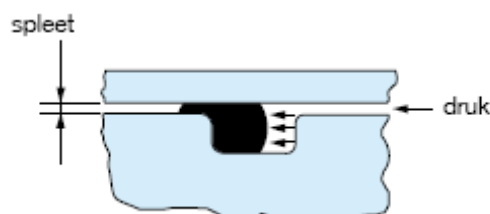
Figuur 5.2: Afdichting met o-ring.

Bij statische afdichtingen is de indrukking van de o-ring doorgaans ca. 15 – 25%, in sommige gevallen kan de o-ring zelfs tot 30% ingedrukt worden. Meer dan 30% indrukking veroorzaakt spanningen in het materiaal en een vroegtijdige degeneratie van de afdichting. Bij dynamische afdichtingen is de indrukking ca. 8 – 20%.

O-ringen met een kleinere snoerdiameter (Figuur 5.1) worden in verhouding procentueel aanmerkelijk meer ingedrukt dan o-ringen met een grotere snoerdiameter om de relatief grotere groeftoleranties te kunnen overbruggen.

Hoe functioneert de afdichting van een o-ring?

Uit het voorgaande blijkt dat de o-ring, mits op de juiste wijze ingedrukt, een afdichting vormt tegen het medium. Door de druk van het medium, zal de o-ring massa vervormen en wordt de o-ring met een grote kracht (afhankelijk van de druk van het medium) tegen de afdichtingvlakken gedrukt. Bij een te grote druk van het medium ten opzichte van de hardheid van het rubber en/of een te grote spleet tussen de af te dichten onderdelen, dreigt gevaar van extrusie van de o-ring in deze spleet. Het resultaat kan dan een beschadigde o-ring zijn, die niet meer kan afdichten.



Figuur 5.3: Spleetextrusie.

Mede van belang zijn dus de indrukking van de o-ring en de spleetgrootte. De spleet die toegelaten mag worden hangt af van de druk van het medium. Naarmate deze druk hoger

wordt, zal de toegestane spleet kleiner worden. Er kan echter ook voor een hardere rubbersoort geopteerd worden, die zal meer weerstand bieden tegen extrusie.

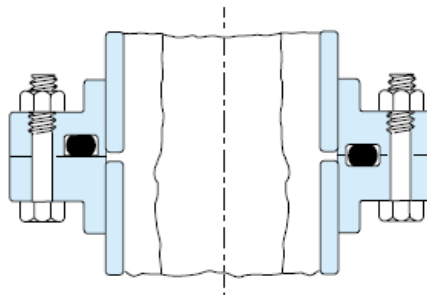
Een zeer belangrijke eigenschap van de o-ring, eigenlijk van het elastomeer, is het terugverend vermogen. Als een elastomeer ingedrukt wordt heeft deze steeds de neiging om terug naar zijn oorspronkelijke toestand te gaan, hierop berust het afdichtingsprincipe. Bij te hoge drukken verliest de o-ring haar initiële afdichtingswerking. De blijvende vervorming is dan te groot, een ander woord hiervoor is 'compression set'

5.2.2 Toepassingen

O-ringen kunnen, zoals hierboven besproken, gebruikt worden voor dynamische en statische toepassingen. Bij dynamische toepassingen zal de dichting gebruikt worden tussen bewegende onderdelen. Een statische afdichting is een afdichting die wordt gebruikt tussen delen die niet bewegen t.o.v. elkaar.

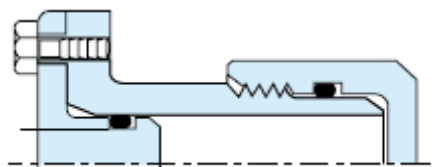
Bij statische toepassingen kunnen zich drie situaties voor doen:

- De o-ring diameter wordt axiaal ingedrukt, bijvoorbeeld als afdichting tussen vlakke flenzen.



Figuur 5.4: Axiale indrukking van een o-ring

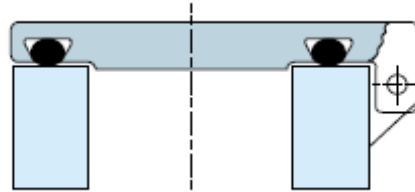
- De o-ring snoerdiameter wordt radiaal ingedrukt.



Figuur 5.5: Radiale indrukking van een o-ring.

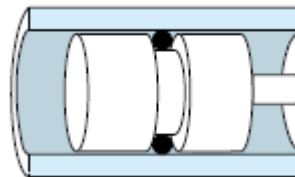
- De o-ring wordt "geplet" en is "niet-zelf-werkend", maar vult de af te dichten ruimte geheel (zgn. crushseal).

- De o-ring snoerdiameter wordt axiaal ingedrukt, maar dan in een speciale situatie, waar de ring mechanisch wordt "vastgehouden". Bijvoorbeeld bij een deksel dat regelmatig open en dicht gaat.



Figuur 5.6: O-ring in een deksel.

Een dynamische afdichting bevindt zich tussen bewegende delen. Deze zorgt voor de afdichting bij schuivende, oscillerende en roterende bewegingen. Bijvoorbeeld: de afdichting bij een zuiger.



Figuur 5.7 : O-ring als afdichting bij een zuiger.

5.2.3 Eigenschappen van elastomeren

Hardheid

De hardheid van een materiaal is de weerstand van het materiaal tegen plastische deformatie.

De hardheid van een elastomere o-ring wordt meestal aangegeven in graden Shore A durometer ($^{\circ}$ Sh. A). Deze meting wordt namelijk per definitie uitgevoerd op een bij norm geometrisch vastgelegd proefstukje met dikte 6 mm. In de praktijk is het echter moeilijk uitvoerbaar om de Shore hardheid van een o-ring te meten.

De meting volgens Micro-IRHD (International Rubber Hardness Degrees) is beter geschikt om de hardheid van elastomere eindproducten te bepalen. De IRHD-test is een meting van de weerstand die een elastomeer biedt tegen een bepaalde indrukking, gebaseerd op de diepte van de penetratie van een bolvormige kogel.

In het gebied tussen 40 en 75 IRHD en °Shore A is het meetverschil tussen IRHD en °Shore A gering, vooropgesteld dat een proefstukje met dikte 6 mm wordt gemeten.

Een IRHD waarde van nul representeert een materiaal met een Young Modulus van nul en IRHD waarde van honderd stelt een materiaal voor met een Young Modulus die oneindig groot is.

De relatie tussen de diepte van de penetratie en de IRHD waarde is:

$$\frac{F}{E} = 0,0038r^{0,65} \times D^{1,35}$$

Waarin de volgende symbolen worden gebruikt:

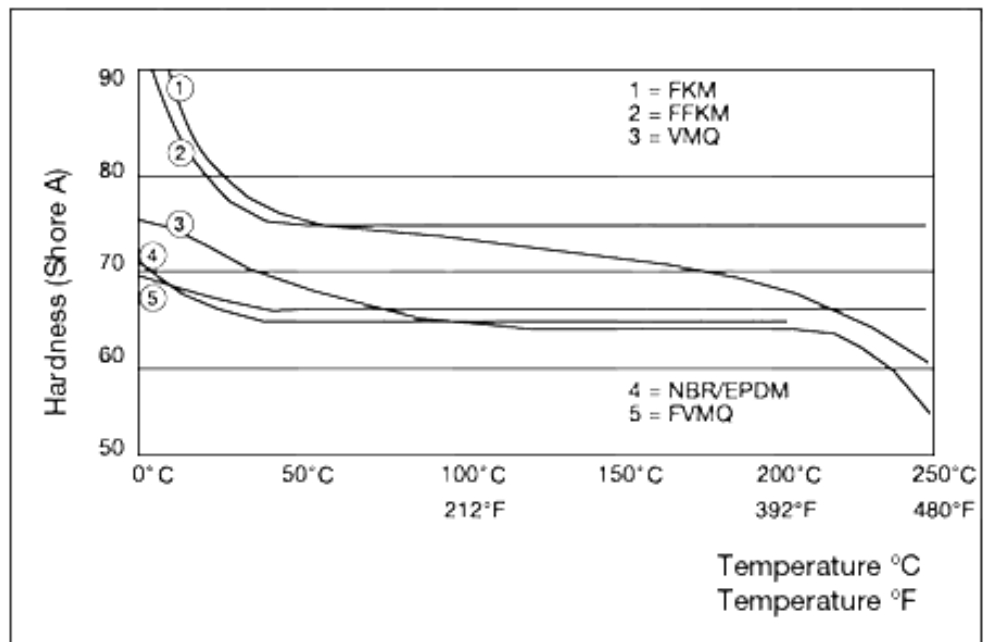
- F = de indrukkraft (N),
- E = de Young Modulus (MPa),
- r = de straal van de kogel (mm),
- D = de diepte van de penetratie (mm). [18]

Er zijn verschillende normen voor het bepalen van de hardheid van een elastomeer. Voor de Shore A hardheid zijn dit volgende normen: ASTM D2240, DIN 53505, BS 2719, ISO 7619 en voor de IRHD zijn dat deze normen: ASTM D 1415 en DIN 53519.

De hardheid van een o-ring is in sommige opzichten belangrijk:

- Hoe zachter het materiaal, hoe beter het zich aanpast aan het afdichtingvlak, en hoe beter het afdichtend vermogen zal zijn bij lage drukken.
- Hoe zachter de component, hoe minder kracht nodig is om de o-ring samen te drukken (of te vervormen).
- Bij het stijgen van de temperatuur zal het elastomeer eerst zachter worden. Na verloop van tijd zal verharding optreden. Dit is het gevolg van veroudering van het elastomeer (het vulkanisatieproces wordt langzaam verdergezet).

Voorbeeld: Een zachte o-ring van 60-70 IRHD zal zich gemakkelijker aanpassen aan onevenheden van het dichtingsvlak dan een o-ring met een hardheid van 80-90 IRHD. Tegelijkertijd zal een zachte dichting minder spanning geven bij dezelfde vervorming.



Grafiek 5.1: Hardheid in functie van de temperatuur van verschillende elastomeren.

Blijvende vervorming

Gevulkaniseerd rubber heeft een groot herstelvermogen. Als de opgelegde belasting of deformatie verdwijnt, keert het materiaal in korte tijd grotendeels terug naar zijn oorspronkelijke vorm. Een zekere mate van vervorming blijft echter vrijwel altijd zichtbaar. Dit verschijnsel wordt aangeduid als "blijvende vervorming" (of "compression set").

Restelasticiteit is een maatstaf voor het resterend afdichtend vermogen. Dit begrip wordt gehanteerd om aan te geven hoe groot het vermogen is van een elastomeer, bijvoorbeeld een o-ring, om na indrukking terug te keren tot zijn oorspronkelijke dikte. Als het niet terugkeert naar de oorspronkelijke dikte dan kunnen er lekken ontstaan.

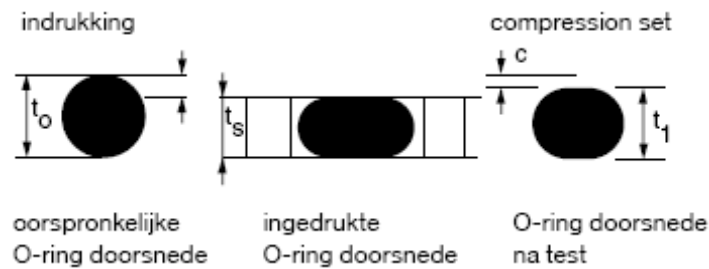
De blijvende vervorming wordt uitgedrukt in een percentage en wordt als volgt bepaald:

$$C = \frac{(t_0 - t_1)}{(t_0 - t_s)} \times 100\%$$

Waarbij:

- C = compressie set (%),
- t_0 = oorspronkelijke doorsnede (mm),
- t_1 = doorsnede na de test (mm),
- t_s = doorsnede bij belasting (mm).

Hoe lager de uitkomst, hoe beter de kwaliteit. De blijvende vervorming wordt groter, naarmate de temperatuur stijgt.



Figuur 5.8: Compression set.

Treksterkte en rek bij breuk

De treksterkte is de kracht op het moment dat het elastomeer breekt, gedeeld door de doorsnede van de proefstaaf in ongedeelte toestand. De rek bij breuk is de procentuele verhouding van de afstand tussen twee op het rubber aangebrachte merkstrepen op het moment van breken en de oorspronkelijke afstand tussen die strepen.

Voor trekproeven gebruikt men haltervormige trekstaven. De staven worden met een constante snelheid, van meestal 500 mm/min, stuk getrokken waarbij de kracht en verlenging van het rubber geregistreerd worden.

Permeabiliteit van gassen

Alle elastomeren zijn permeabel voor gassen, de één meer dan de ander. De permeabiliteit hangt af van de samenstelling van het elastomeer, maar ook van de bedrijfstemperatuur. Hoe hoger de temperatuur, hoe hoger de permeabiliteit van het elastomeer. Het is dus niet eenvoudig om de grootte van de permeabiliteit aan te geven.

Wel kan er een globale indicatie gegeven worden van rangorde waarin de permeabiliteit van diverse elastomeren kan worden ingedeeld. Volgende opsomming geeft een overzicht van de verschillende rubbers in volgorde van geringe permeabiliteit naar grotere permeabiliteit:

- butylrubber (IIR) en epichlorohydrinerubber (ECO),
- polyurethaanrubber (PUR),
- nitrilerubber (NBR),
- Viton® of fluorelastomeer (FKM),
- neopreen (CR),
- siliconenrubber heeft een zeer grote permeabiliteit.

Bij toepassingen in de vacuümtechniek speelt de gasdoorlaatbaarheid van de o-ring een grote rol. Een grotere indrukking en toepassing van hoog-vacuüm vetten geven een verbetering in gasdoorlaatbaarheid. Hier moet ook rekening gehouden worden met speciale groefafmetingen.

Bij hoge gasdrukken en plotselinge drukvermindering dient rekening gehouden te worden met de permeabiliteit van het gas. Indien gas onder hoge druk de gelegenheid krijgt in voldoende mate in het elastomeer binnen te dringen, dan zal bij plotselinge drukvermindering dit binnengedrongen gas expanderen en weer uit het elastomeer willen treden. Indien dit te abrupt gebeurt, is de mogelijkheid niet uitgesloten dat daarbij de ring wordt beschadigd.

Over het algemeen wordt aangenomen dat bij drukken hoger dan ca. 30 à 40 bar, dit fenomeen kan optreden. Eén en ander is afhankelijk van de gasdruk, de temperatuur en het rubbercomponent. Verbetering kan worden gevonden in de graduele verlaging van de gasdruk of in het gebruik van dunnere ringen met een grotere hardheid en hoog soortelijk gewicht.

Ontgassing

Sommige rubbercomponenten bevatten na vulkanisatie nog relatief vluchtige bestanddelen. Deze bestanddelen kunnen ontsnappen uit het rubber, dit gebeurt hoofdzakelijk bij toepassingen in het vacuümgebied. Ook de temperatuur is hierbij van belang, hoe hoger de temperatuur hoe groter de ontgassing. Ontgassing zal volumevermindering van de o-ring tot gevolg hebben. Deze volumevermindering kan voor een groot deel gecompenseerd worden door de o-ring bij inbouw meer te comprimeren dan normaal.

Uitzettingscoëfficiënt

Hoewel voor verschillende elastomeren de lineaire en volumetrische uitzettingscoëfficiënt verschillend is, kan ruwweg aangenomen worden dat de uitzettingscoëfficiënt voor rubber ca. 10 maal zo groot is als voor staal, nl. $ca. 1,50 \times 10^{-6} /K$.

Voor Viton® componenten gelden zelfs nog grotere uitzettingscoëfficiënten dan voor de meest gangbare elastomeren, nl. $2,30 \times 10^{-6} /K$. Met het ontwerpen van groefafmetingen bij temperaturen boven 150 °C moet hiermee rekening worden gehouden.

Brosheid bij lage temperaturen

Naarmate de temperatuur lager wordt neemt de thermische bewegelijkheid van de moleculen af, het rubber wordt steeds stijver. De respons op spannings- of deformatieveranderingen wordt ook steeds trager. Beneden een bepaalde temperatuur is er van moleculaire bewegelijkheid nauwelijks nog sprake, het rubber wordt dan glasachtig. Het effect is omkeerbaar, bij opwarmen wordt het rubber weer elastisch. De temperatuur waarbij het

rubber glasachtig en bros wordt, kan ondermeer bepaald worden met een "brittleness"-apparaat.

Het is niet aan te raden het rubber onder deze temperaturen te gebruiken. Omdat door het verlies van zijn elastomere eigenschappen, het rubber niet meer goed zal afdichten en er lekken zullen ontstaan.

Straling

Eén van de belangrijkste eigenschappen van elastomere o-ringen is de blijvende vervorming. Bij blootstelling aan straling wordt deze eigenschap beïnvloed. Gammastraling heeft het grootste effect. Na het ervaren van 1,08 Gy^h zal het elastomeer nog maar 85% van de oorspronkelijke waarde van de blijvende vervorming hebben en dit zal voor lekken zorgen. Bij een stralingsdosis lager dan 1,06 Gy is er geen groot gevaar meer.

Abrasieweerstand

Dit is de weerstand van het elastomeer tegen het schuren met de 'wand'. Er moet rekening gehouden worden met de wandruwheid van het roestvaststaal van de groef waar de o-ring wordt ingebracht. Deze moet aan bepaalde waarden voldoen. Voor statische toepassingen moet de wandruwheid (minstens) gelijk zijn aan 0,8 µ Ra.

Van alle criteria met betrekking tot oppervlaktekwaliteit zijn Ra en Rt (uitgedrukt in µm) de meest gebruikte om de ruwheid van de bewerkte oppervlakte aan te gaven. Rt staat voor de totale ruwheid en geeft de maximale diepte of amplitude van de ruwheid. De rekenkundige ruwheid wordt aangeduid als Ra en geeft de gemiddelde rekenkundige afwijking van de gemiddelde lijn van de ruwheid weer.

Het bekomen van een bepaalde wandruwheid is mogelijk door het staal te borstelen of te polijsten.

^h De gray (symbool Gy) is de SI-eenheid van hoeveelheid geabsorbeerde radioactieve straling. Eén gray is gelijk aan de absorptie van één joule stralingsenergie door een kilogram materie. $1 \text{ Gy} = 1 \frac{\text{J}}{\text{kg}} = 1 \frac{\text{m}^2}{\text{s}^2}$.

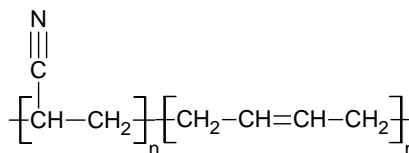
5.2.4 Soorten elastomeren

Acrylonitrile butadieenrubber, nitrilerubber (NBR)

Nitrilerubber is een copolymeer van butadieen en acrylonitrile.

Acrylonitrile is aanwezig in vele commerciële producten, de aanwezigheid in materialen kan variëren van 18 tot 50%. Met stijgende concentratie aan acrylonitrile, stijgt ook de resistentie tegen apolaire solventen, maar daartegenover staat wel dat de flexibiliteit op lage temperatuur daalt.

Door zijn excellente resistentie tegen koolwaterstoffen en de mogelijkheid tot vorming van een copolymeer (-35 °C tot 120 °C) is acrylonitrile één van de meest gebruikte elastomeren in de afdichtingsindustrie.



Figuur 5.9: Algemene structuurformule van nitrilerubber.

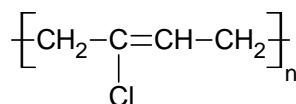
NBR componenten zijn beter dan de meeste andere elastomeren betreft de blijvende vervorming en abrasieweerstand. Ze hebben echter geen goede weerstand tegen ozon, zonlicht en andere weersinvloeden. De weerstand tegen zonlicht kan verbeterd worden door toevoeging van andere componenten.

NBR is een standaard materiaal voor hydraulische en pneumatische toepassingen.

Door hydrogenatie, toevoeging van carbonzuren of PVC blending, kan het polymeer voldoen aan verschillende chemische en fysische vereisten.

Chloropreenrubber, neopreen, CR

CR staat voor chloropreenrubber ook neopreen genoemd. Neopreen rubbers zijn homopolymeren van chloorbutadieen en zijn één van de eerste synthetische rubbers die gebruikt werden om afdichtingen te produceren.

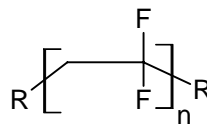


Figuur 5.10: Algemene structuurformule van chloropreenrubber.

Neopreen is goed bestand tegen veroudering en weersinvloeden, evenals tegen abrasie. Het is zeer flexibel maar niet bestand tegen aromatische en oxiderende solventen, evenals tegen minerale oliën.

Fluorcarbonrubber, Viton®, FKM

FKM is de afkorting die door ASTM wordt gegeven aan de categorie van fluorelastomeren, Viton® is de merknaam voor een fluorelastomeer dat door DuPont wordt geproduceerd. FKM is een copolymeer dat bestaat uit vinylideenfluoride en hexafluorpropeen.



Figuur 5.11: Algemene structuurformule van een fluorcarbonrubber.

Fluorpolymeren staan bekend om hun extreme weerstand tegen zuren, basen en solventen. Ook hebben ze een breed temperatuurrezistentie gebied. FKM blijft intact bij temperaturen van $-26\text{ }^{\circ}\text{C}$ tot $205\text{ }^{\circ}\text{C}$ /230 $^{\circ}\text{C}$. Voor korte periodes kan het zelfs nog hogere temperaturen aan. Een nadeel van de fluorcarbonrubbers is dat ze duur zijn en dat ze slechte rubbereigenschappen hebben.

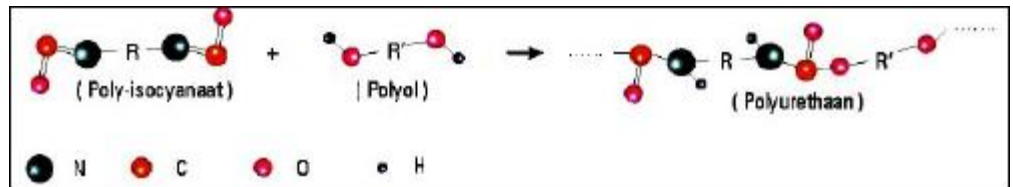
Door de fluorconcentratie te verhogen, zal de chemische weerstand verbeteren, maar de resistentie tegen lage temperaturen verslechteren.

Polyurethaanrubber, PUR

Polyurethaanrubber is een copolymeer dat bestaat uit twee verschillende segmenten: enerzijds is er het zogenaamde hard segment dat wordt gevormd door een di-isocyaanaat; anderzijds is er een zacht segment dat door een polyol gevormd wordt.

Het copolymeer ontstaat door een exotherme reactie van een di-isocyaanaat en de alcohol groepen uit het polyol ter vorming van een urethaanbinding. Er ontstaat een lange keten met afwisselend harde en zachte segmenten.

De harde segmenten op zich hebben de neiging te kristalliseren en een hard en bros materiaal te vormen. De zachte segmenten zouden los bekeken een zachte stroperige vloeistof geven. PUR kan tegelijkertijd buigzaam en toch sterk en slijtvast zijn. Bovendien kan door de keuze van de lengte (verdeling) van het zachte segment en de functionaliteit van zowel zacht als hard (het aantal -NCO of -OH groepen per molecuul) de eigenschappen van het materiaal binnen ruime grenzen aangepast worden.



Figuur 5.12: Polyadditiereactie ter vorming van polyurethaanrubber. [19]

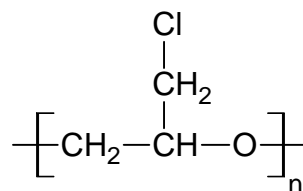
De polyurethanen kunnen onderverdeeld worden in verschillende groepen:

- Elastomeren. Functionaliteit -OH:-NCO meestal 2:2 met lange zachte segmenten. Er wordt geen blaasmiddel gebruikt. Het ontstane rubberachtige materiaal wordt bijvoorbeeld gebruikt voor de wieltjes van een skateboard. Een andere bekende toepassing van deze elastomeren is in textiel, zoals in zwemkleding en andere rekbare kleding soorten (Lycra® en Elastan®).
- Zachte schuimen. Functionaliteit meestal >2:2, lange segmenten. Er wordt een blaasmiddel toegevoegd aan de formulering waardoor er een schuim ontstaat met een open celstructuur. Toepassing: kussens, matrassen, de stoelbekleding, ...
- Harde schuimen. Functionaliteit >2:>2. Korte segmenten, met blaasmiddel. Er ontstaat een hard schuim met dichte cellen gevuld met een warmte-isolerend gasmengsel. Het wordt vooral toegepast in koelkasten, als "PUR – schuim" in spuitbussen en in atletiekpistes.

Voor afdichtingen zal PUR als elastomeer gebruikt worden.

Epichlorohydrinerubber, ECO

Epichlorohydrinerubber (C_3H_5ClO) is een epoxide, waardoor het een zeer reactief molecule is. Deze stof wordt gemaakt uit propene, met als intermediair 3-chloropropene.

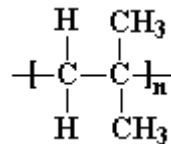


Figuur 5.13: Algemene structuurformule van epichlorohydrinerubber.

Dit polymeer is gekend voor zijn lage gasimpermabiliteit en goede eigenschappen in een breed temperatuurgebied. Ook bezit het een zeer goede resistentie tegen oliën en tegen alle weersomstandigheden. ECO kan gebruikt worden tussen $-51\text{ }^{\circ}\text{C}$ en $150\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Butylrubber, IIR

Butylrubber is een copolymeer van isobuteen en isopreen. Het wordt vervaardigd uit het monomeer isobuteen. Dit gebeurt via kationische additie polymerisatie. [13]

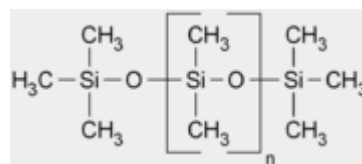


Figuur 5.14: Algemene structuurformule van PIB. [20]

Butylrubber is één van de meest gasdoorlaatbare materialen. Het bezit eveneens een goede chemische bestendigheid. Het is bruikbaar in een temperatuurgebied van $-55\text{ }^{\circ}\text{C}$ tot $105\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Siliconenrubber, VMQ

VQM is de afkorting voor dimethylsiliconenrubber volgens de ASTM norm. Siliconenrubbers zijn in feite anorganische polymeren. In plaats van de normale koolstofketen heeft deze groep van materialen een chemische structuur die gekenmerkt wordt door silicium-zuurstofbindingen. De zich herhalende structuur lijkt op die van silicaatmineralen (zand). Op de siliciumatomen bevinden zich organische groepen, dit kan een fenyl-, methyl- of vinylgroep zijn.



Figuur 5.15: Algemene structuurformule van siliconenrubber.

Door de silicium-zuurstof-binding heeft deze rubber een superieure thermische stabiliteit. Siliconenrubbers kunnen gebruikt worden tot $220\text{ }^{\circ}\text{C}$. VMQ heeft een erg lage blijvende vervorming, dit wil zeggen dat het een zeer goed terugverend vermogen heeft. [21]

Samenvatting

Hierna volgen 2 tabellen die een overzicht geven van de eigenschappen die belangrijk zijn voor elastomere afdichtingen.

Tabel 5.1: Overzicht belangrijkste eigenschappen van de elastomeren.

Elastomeer	Hardheid IRHD [± 5°]	Blijvende vervorming	max. T [°C]	min. T [°C]
Nitrilerubber 36624	70	max. 20%	-35	110
Siliconenrubber 714177	70	max. 40%	-55	230
Neopreen 32906	70	max. 25%	-45	120
Viton® black 51414	75	max. 18%	-15	210
Viton® black 514320	90	max. 18%	-15	210
Epichlorohydrinerubber	70	10 - 30%	-35	120
Polyurethaanrubber	70	10 - 30%	-30	80
Butylrubber	70		-50	130

Tabel 5.2: Overzicht belangrijkste eigenschappen van de elastomeren, vervolg.

Elastomeer	Gaspermeabiliteit	Stralingsweerstand
Nitrilerubber 36624	goed - excellent	redelijk
Siliconenrubber 714177	slecht	zwak - goed
Neopreen 32906	redelijk	redelijk
Viton® black 51414	redelijk	redelijk
Viton® black 514320	redelijk	redelijk
Epichlorohydrinerubber	excellent	slecht
Polyurethaanrubber	voldoende	goed - excellent
Butylrubber	goed	zwak - goed

5.2.5 Opslag van elastomere o-ringen

De toelaatbare opslagtijd van gevulkaniseerde elastomere o-ringen is afhankelijk van het type elastomeer. In de volgende tabel worden de minimale opslagtijden weergegeven voor de gebruikte materialen.

Tabel 5.3: Minimale opslagtijden elastomere o-ringen.

Materiaal	Afkorting	Min. Opslagtijd [Jaar]
Nitrilerubber	NBR	3-5
Fluorelastomeer, Viton®	FKM	20
Butylrubber	IIR	5-10
Chloropreenrubber, neopreen	CR	5-10
Polyurethaanrubber	PUR	3-5
Siliconenrubber	VMQ	10

5.3 Metalen afdichtingen

5.3.1 Inleiding

Metalen ringen zijn statische afdichtingen die hoge temperatuur, druk en vacuüm kunnen weerstaan. Er zijn drie basistypes van metalen ringen: volle, 'self-energized' en 'pressure-filled' ringen. 'Self-energized' metalen ringen zijn ringen die binnenin voorzien zijn van een veer die zorgt voor een druk binnen op de wanden van de ring. 'Pressure-filled' metalen ringen zijn ringen die gevuld zijn met een gas en op een bepaalde druk gebracht worden.

Metalen ringen bestaan in vele verschillende vormen, groottes en materialen. Sommige zijn rond, andere rechthoekig. Ze variëren ook in diameter, lengte en zijn vervaardigd uit verschillende materialen (zoals RVS en nikkel-chroomlegeringen) en gecoat met koper, zink, aluminium, nikkel, goud of indium. De ringen kunnen ook een warmtebehandeling ondergaan hebben of behandeld worden met weekmakers. Metalen ringen hebben een bepaald werkingsgebied voor temperatuur en druk.

Sommige metalen ringen zijn in de vorm van een letter. Bijvoorbeeld o- en c-ringen die dienst doen als afdichtingen. Ook bestaan er u- en v-ringen die eenzelfde geometrische structuur hebben en dikwijls als één type worden beschouwd, deze ringen zijn zeer robuust en bestand tegen hoge temperaturen en drukken. E- en w-ringen zijn nog andere lettervormige metalen ringen.

Metalen ringen worden voor vele doeleinden gebruikt. Zoals in de luchtvaart, in energiecentrales en bij nucleaire toepassingen. Ook worden ze gebruikt in industriële 'piping' en kleppen. Chemische bedrijven gebruiken afdichtingen met een hoge resistentie tegen corrosieve media zoals zuren en solventen. MIL-SPEC metalen ringen zijn speciaal ontworpen voor militaire toepassingen

5.3.2 C-ringen

In de testen zal alleen gebruik gemaakt worden van c-ringen, daarom zullen enkel deze verder besproken worden.

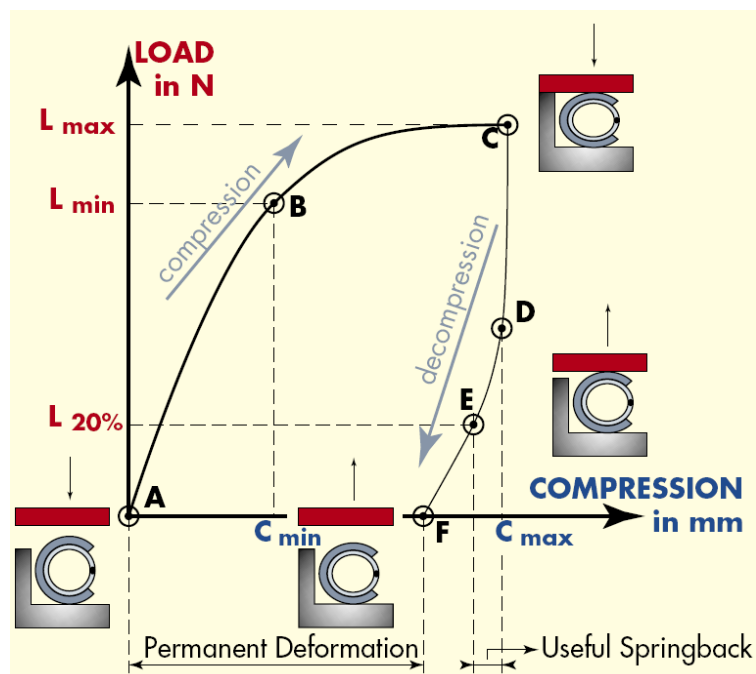


Figuur 5.16: Doorsnede c-ring.

C-ringen combineren de effectiviteit van een elastomere o-ring en de hoge temperatuurrestantie van metalen afdichtingen. Er worden vele verschillende materialen gebruikt en meestal is de c-ring gecoat met een extra beschermlaag.

Afdichtingsprincipe

Het afdichtingsprincipe van een metalen c-ring is gemakkelijk weer te geven in een grafiek.



Grafiek 5.2: Compressiecyclus van een c-ring.

Compressiecyclus, de afdichting installeren:

Dichting voor compressie.

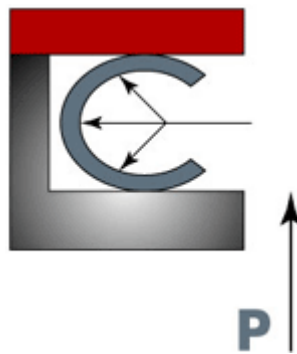
- A. Dichting bij minimale compressie, C_{\min} = maximale groefdiepte.
- B. Dichting bij maximale compressie, C_{\max} = minimale groefdiepte.
- C. Tussen B en C ligt de optimale afdichting. B en C worden altijd door de fabrikant gegeven.

Decompressiecyclus, de bouten terug losdraaien:

- D. De veerkracht van de afdichting overwint de overige (decompressie) belasting, dit wordt het terugverend vermogen genoemd.
- E. Het terugverend vermogen van de afdichting bij 20% van de maximale belasting wordt ook wel het nuttig terugverend vermogen genoemd.
- F. Als er geen belasting meer op de afdichting berust, zal de afdichting het totaal terugverend vermogen vertonen, dit is de plastische herstelling van de afdichting.

De afdichting gaat dus niet meer naar zijn oorspronkelijke vorm, de afwijking t.o.v. de oorspronkelijke vorm wordt de permanente deformatie genoemd. [22]

Bij c-ringen is deze vervorming slechts klein, veel kleiner dan bij metalen o-ringen. Hierdoor verzekert de c-ring een goede afdichting.



Figuur 5.17: Druk die binnenin een c-ring werkt op de wanden.

De c-ring is hol en kan zijn vorm behouden (breekt dus niet) doordat er een druk wordt uitgeoefend op de wanden van de c-ring. De druk binnenin de c-ring is afkomstig van de hydrostatische druk. Bij systemen onder hoge druk zal de afdichting met c-ring verbeteren. Dit is eenvoudig te verklaren, binnenin de c-ring zal een grote druk ontstaan waardoor de wanden van de c-ring naar buiten geduwd worden en beter afdichten.

C-ringen kunnen binnenin ook voorzien zijn van een veer. Deze veer ondersteunt de c-ring en zal zo zorgen voor een extra druk die van binnenin op de wanden van de c-ring werkt. [23]

5.3.3 Algemene eigenschappen van metalen

Chemische eigenschappen:

Corrosievastheid is voor deze toepassing de belangrijkste chemische eigenschap, dit is het vermogen van een materiaal weerstand te bieden tegen chemische of elektrochemische aantasting door stoffen uit de omgeving.

Fysische eigenschappen:

De warmtegeleidingscoëfficiënt en de (thermische) lineaire uitzettingscoëfficiënt zijn voor deze toepassing belangrijke eigenschappen. De warmtegeleidingscoëfficiënt geeft de hoeveelheid warmte weer die per eenheid van tijd door een homogeen materiaal stroomt en dit per eenheid van oppervlakte, per eenheid van temperatuursgradiënt in de richting die loodrecht op het oppervlak staat. De uitzettingscoëfficiënt geeft de lengteverandering per graad temperatuurverandering weer. De waarde wordt meestal opgegeven voor een bepaald temperatuurgebied.

Mechanische eigenschappen [24]

Verschillende mechanische eigenschappen zijn reeds uitgelegd in het vorige hoofdstuk over elastomeren, daarom hier een bondig overzicht:

1. Sterkte

- **Treksterkte:** de verhouding tussen de maximale belasting in een trekproef en de oorspronkelijke dwarsdoorsnede van de proefstaaf. Deze wordt gegeven in Newton per vierkante meter.
- **Elasticiteitsgrens:** de spanning waarbij een materiaal plastische deformatie begint te vertonen, ook rekgrens genoemd.
- **Druksterkte:** de grootste drukspanning die een materiaal kan weerstaan.
- **Afschuifsterkte:** de spanning waarbij er breuk optreedt in het vlak van een doorsnede van het materiaal. De belastingscondities zijn daarbij zodanig dat de kracht en tegenkracht evenwijdig zijn, maar niet in elkaars verlengde en tegengesteld gericht.
- **Elasticiteitsgrens bij compressie:** de spanning waarbij samengedrukt materiaal plastische deformatie vertoont.

- Kruipsterkte: de constante nominale spanning die in een gegeven tijd bij een constante temperatuur een vooraf bepaalde hoeveelheid kruip teweegbrengt.

2. Vervormbaarheid

- Blijvende vervorming.

3. Stijfheid

- Elasticiteitsmodulus: de verhouding tussen de spanning en de rek in een materiaal in het elastische gebied. Het is een maat voor de stijfheid van een materiaal.

4. Taaiheid

- Kerfslagvastheid: de hoeveelheid energie die nodig is om een gegeven volume van een materiaal te doen breken.

5. Duurzaamheid

- Hardheid: de weerstand die een materiaal biedt tegen plastische deformatie (gewoonlijk teweeggebracht door een hard standaardvoorwerp in het materiaal in te drukken).
- Kruip: tijdsafhankelijke toenemende rek bij een continue belasting.

Blootstelling van metalen aan een hoge druk van waterstof, deuterium of tritium resulteert in waterstofbrosheid van het materiaal. Dit kan resulteren in het falen van het materiaal en is afhankelijk van het type materiaal, de druk en temperatuur. Bijkomend, materialen die blootgesteld zijn aan tritium zijn ook onderhevig aan heliumbrosheid.

5.3.4 Materialen [24]

Een metalen c-ring kan uit verschillende materialen bestaan. In de proeven wordt gebruik gemaakt van c-ringen in een nikkel-chroomlegering (X750), deze zijn steeds gecoat. Drie verschillende coatings kunnen gebruikt worden: koper, zilver en aluminium. Koper en zilver worden via plating op de nikkel-chroomlegering gebracht, dit geeft een laagje van 0,05 à 0,07 mm dikte. Plating kan niet bij aluminium worden toegepast omdat het laagje te dun zou zijn en zou barsten. Aluminium wordt als mantel aangebracht op de nikkel-chroomlegering.

Inconel X750:

Inconel X750 is een nikkel-chroomlegering. Nikkel en de meeste legeringen met een hoog nikkelgehalte hebben hetzelfde uiterlijk als staalsoorten. Zuiver nikkel heeft een smeltpunt van 1455 °C en een elasticiteitsmodulus van 21×10^4 MPa, ongeveer dezelfde waarden die

ook voor staal worden gevonden. Bij temperaturen lager dan 360 °C is nikkel ferromagnetisch. Terwijl de dichtheid van de meeste staalsoorten 7,85 g/cm³ bedraagt, heeft nikkel een dichtheid van 8,9 g/cm³. De uitzettingscoëfficiënt van nikkel, $15,3 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, verschilt weinig van die van staal ($15,1 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$). De warmtegeleidingscoëfficiënt van nikkel, 870 W/(m×K), is hoger dan die van staal (467 W/(m×K)). De fysische eigenschappen van zuiver nikkel zijn dus -met uitzondering van het elektrisch en het thermisch geleidingsvermogen- in het algemeen ongeveer gelijk aan die van staal.

Zuiver nikkel bezit enkele unieke corrosie-eigenschappen. Het is buitengewoon goed bestand tegen bijtende basen, ongeacht de concentratie van die chemicaliën, en tot een temperatuur van meer dan 150 °C. Nikkel roest niet en wordt niet aangetast in zeewater. De weerstand van nikkel tegen de aantasting door zuren verschilt van geval tot geval. De nikkel-chroomlegeringen staan bekend om hun weerstand tegen corrosie bij verhoogde temperaturen. Het belangrijkste metaal in deze legeringen is nikkel, maar het chroomgehalte kan wel 40% bedragen. De corrosieweerstand neemt in het algemeen toe met het chroomgehalte.

Inconel X750 wordt meestal gebruikt vanwege zijn goede mechanische eigenschappen bij hoge temperatuur. Het is mogelijk om de legering te precipitatieharden, zo wordt het materiaal sterker. De hardheid na deze behandeling zal nooit hoger zijn dan 300 HB.

Aluminium:

Aluminium is een goede elektrische geleider; het is ductiel en kan gemakkelijk worden gegoten. Aluminium bezit een aantal eigenschappen die het een aparte plaats geven ten opzichte van andere metalen. Ten eerste is het lichter dan elk ander technisch metaal, met uitzondering van magnesium en beryllium. Het heeft een dichtheid van ongeveer 2700 kg/m³. De verhouding tussen sterkte en gewicht is hoog.

Een tweede belangrijke eigenschap van aluminium is dat het een hoog thermisch en elektrisch geleidingsvermogen heeft.

De derde eigenschap is de corrosieweerstand. Aluminium wordt weinig gebruikt voor toepassingen die om weerstand tegen chemicaliën vragen, maar meer voor toepassingen die weerstand tegen atmosferische corrosie vereisen.

Aluminium heeft een lagere stijfheid dan staalsoorten, maar de specifieke stijfheid (elasticiteitsmodulus/dichtheid) is vergelijkbaar met deze van staal.

Koper

De belangrijkste fysische eigenschap van koper is dat het een zeer groot elektrisch geleidend vermogen heeft. Binnen dat gebied bevinden zich dan ook de meeste toepassingen. Enkele

andere belangrijke fysische eigenschappen zijn kleur, vonkweerstand, niet-magnetiseerbaarheid en smeltpunt. Koper heeft ook een groot warmtegeleidend vermogen.

Vaak worden vanwege de lage treksterkte van zuiver koper, legeringselementen aan koper toegevoegd om de sterkte en de hardheid te verbeteren.

Zilver

Zilver is een wit, ductiel metaal. Zilver en zilverbindingen kennen veel toepassingen. Zuiver zilver is de beste geleider van warmte en elektriciteit van alle bekende metalen, daarom wordt het gebruikt om soldeer, stopcontacten en stroomplinten van te maken. Zilver is daarnaast de beste licht weerkaatsende stof.

6 Testen van afdichtingen

6.1 Concept

In het vorige hoofdstuk werd een mogelijk ontwerp besproken van vaten voor het opslaan van tritiumafval. Omdat de beschikbare informatie in de literatuur beperkt is, werd gekozen om te beginnen met het testen van een zwakke schakel in het vat, *de afdichting*.

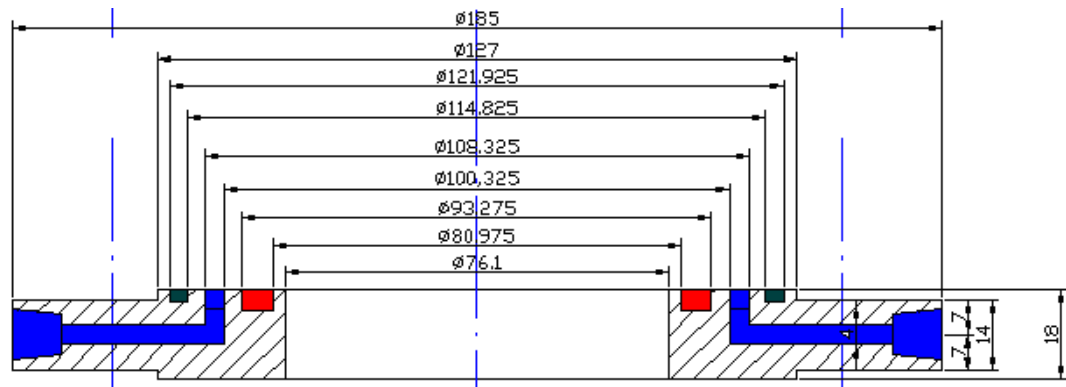
Het afdichten van de box met bouten heeft de voorkeur op lassen. Bij lassen is er altijd een brandgevaar en het vat is niet heropenbaar als het dichtgelast wordt. Als het deksel met bouten dichtgeschroefd wordt, moet er een afdichting tussen box en deksel voorzien worden. Dit afdichten gebeurt meestal met behulp van een metalen of een elastomere ring. In dit project zullen verschillende dichtingen kwantitatief getest worden, om een idee te krijgen welke dichting de beste lekdichtheid heeft voor tritium.

Om de afdichtingen te kunnen testen op hun lekdichtheid worden verschillende flenzen op elkaar gemonteerd met tussen de flenzen de te testen afdichting, zoals voorgesteld in Figuur 6.1.

The diagram shows a 3D cutaway view of a flange assembly. It consists of two main parts: a grey outer flange and a blue inner flange. Between them are two seals: a black outer seal ring and a red inner seal ring. The red seal ring is labeled 'Binnenste afdichtingsring (te testen)'. The black seal ring is labeled 'Buitenste afdichtingsring'. The space between the two flanges is divided into three chambers: a green chamber labeled 'Kamer met testgas (HT)' at the bottom, a blue chamber labeled 'Kamer met dragergas' on the right, and a central chamber. The diagram is oriented diagonally.

Figuur 6.1: Flens met afdichtingen.

In de flens zijn drie groeven uitgefreesd, de binnenste en buitenste groef zijn voor de afdichtingsringen (zie Figuur 6.2). De binnenste afdichtingsring is de ring die getest moet worden, de buitenste ring zorgt voor de afdichting. Binnenin de flenzen heerst een druk opgebouwd met het testgas, dit bevat HT-gas. Tussen beide ringen is een groef voorzien waardoor een dragergas stroomt, helium. Als de te testen dichting testgas doorlaat zal dit meegenomen worden door het dragergas. HT wordt daarna omgezet naar HTO, opgevangen en gemeten.



Figuur 6.2: Dwarsdoorsnede flens voor o-ring. (in mm)

6.2 Gaslekken

6.2.1 Inleiding

Het principe van lekken van gassen wordt beschreven in de wetten van de vloeistofmechanica. Verschillende stromingsmechanismen geschieden bij verschillende lekgrootten.[25]

6.2.2 Stroming van een gas door een opening of scheur

Bij drukken boven 0,01 mbar gedragen gasdeeltjes zich ongeveer als vloeistoffen. De deeltjes zitten zeer dicht bij elkaar, zodat ze meer met elkaar botsen dan met de wand. Als er een drukverschil is zal het gas stromen als een vloeistof. Er bestaan twee verschillende types viskeuze stromingen, nl.: turbulente en laminaire stroming.

Meestal is het bij lekdetectie niet mogelijk juist uit te maken over welke stroming het gaat, het moet geschat worden. Voor stromingen van fluïda in pijpen bestaan verschillende formules, daarvoor moeten verschillende geometrische factoren gekend zijn; bij lekken is dit niet het geval.

Turbulente stroming

Turbulente stroming komt enkel bij zeer grote lekken en bij hoge drukverschillen voor. Bij een lek met turbulente stroming ontstaat er een sissend geluid. De lekgrootten zijn groter dan $10^{-2} \text{ cm}^3/\text{s}$.

Het massadebiet is evenredig met $\sqrt{(p_1^2 - p_2^2)}$.

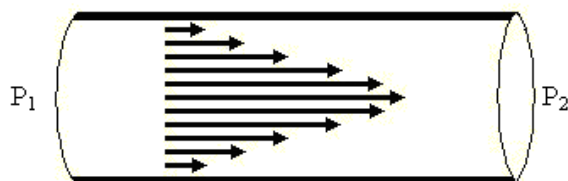


Figuur 6.3: Turbulente stroming

Laminaire stroming

Laminaire stroming wordt gedefinieerd als zijnde moleculen die zich voortbewegen via parallelle stromingslijnen. Het snelheidsprofiel is een parabool. De lekgrootte is van de orde $10^{-1} - 10^{-6} \text{ cm}^3/\text{s}$.

Het massadebiet is evenredig met $(p_1^2 - p_2^2)$.



Figuur 6.4: Laminaire stroming.

De meest gekende formule om laminaire stroming weer te geven is de formule van Poisseuille. Deze beschrijft de stroming door een rechte pijp met een cirkelvormige doorsnede:

$$q = \frac{\pi \times r^4}{16 \times \eta \times l} (p_1^2 - p_2^2)$$

Met daarin:

- η = dynamische viscositeit (Pa.s);
- l = lengte van de ronde pijp (m);
- r = straal van de ronde pijp (m)
- p = druk (Pa);
- q = volume / tijd (m^3/s).

Als er verondersteld wordt dat de geometrische dimensies van een lek niet veranderen tijdens de periode van de meting, kunnen de constanten in de Poisseuille formule gecombineerd worden in één constante K :

$$q = K \frac{(p_1^2 - p_2^2)}{\eta} \quad \text{met } K = \frac{\pi \times r^4}{16 \times l}$$

Uit deze formule kan afgeleid worden, dat hoe groter het drukverschil is bij het lek, hoe meer gas er langs zal lekken. De lekgrootte is recht evenredig met het verschil van de kwadraten van de druk:

$$\frac{q_A}{(p_{A1}^2 - p_{A2}^2)} = \frac{q_B}{(p_{B1}^2 - p_{B2}^2)}$$

Moleculaire stroming

Moleculaire stroming komt voor bij kleine lekken en bij lage drukken. Bij een moleculaire stroming verplaatst iedere molecule zich onafhankelijk van de andere moleculen. De afstand die de moleculen afleggen zonder dat ze botsen, is groter dan de diameter van het capillair van het lek. Omdat de moleculen niet met elkaar botsen maar enkel met de wand, is het mogelijk dat een molecule zich voort beweegt tegen de algemene stromingsrichting in. Ondanks dit feit, is de algemene stroming toch in de richting van de laagste druk.



Figuur 6.5: Moleculaire stroming.

De typische lekgrootte bij moleculaire stroming is kleiner dan $10^{-5} \text{ cm}^3/\text{s}$, het massadebiet is evenredig met $(p_1 - p_2)$.

Moleculaire stroming wordt weergegeven door de formule van Knudsen:

$$q = \frac{\sqrt{2\pi}}{6} \sqrt{\frac{RT}{M}} \frac{d^3}{l} (p_1 - p_2)$$

Met daarin:

- M = relatieve molmassa (g/mol);
- p = druk (Pa);
- d = diameter van het lek (m);
- l = lengte van het lek (m).

Uit de Knudsen formule valt af te leiden dat, in tegenstelling tot laminaire stroming, de lekgruote recht evenredig is met het drukverschil. Bij moleculaire stroming is de lekgruote ook afhankelijk van het moleculair gewicht van het gas, dit is bij laminaire stroming niet het geval.

Transitionele stroming

Tussen laminaire en moleculaire stroming is er een overgangsgebied. In het begin van het lek zal de stroming laminair zijn. Deze verandert gradueel, tot aan het einde van het lek waar de stroming moleculair is.



Figuur 6.6: Transitionele stroming.

De mathematische omschrijving van deze stroming is moeilijk, de meeste formules die beschikbaar zijn hebben elk hun beperkingen. De meest gebruikte formule voor deze stroming is de formule van Burrow. Hij combineert de formule van laminaire en moleculaire stroming.

$$q = \frac{\pi \times r^4}{16 \times \eta \times l} (p_1^2 - p_2^2) + \frac{\sqrt{2\pi}}{6} \sqrt{\frac{RT}{M}} \frac{d^3}{6} (p_1 - p_2)$$

De formule kan enkel gebruikt worden voor ruwe berekeningen. De geometrische dimensies zijn deze voor een ideaal lekcapillair met een ronde doorsnede en met een lengte veel langer dan de diameter.

Samenvatting

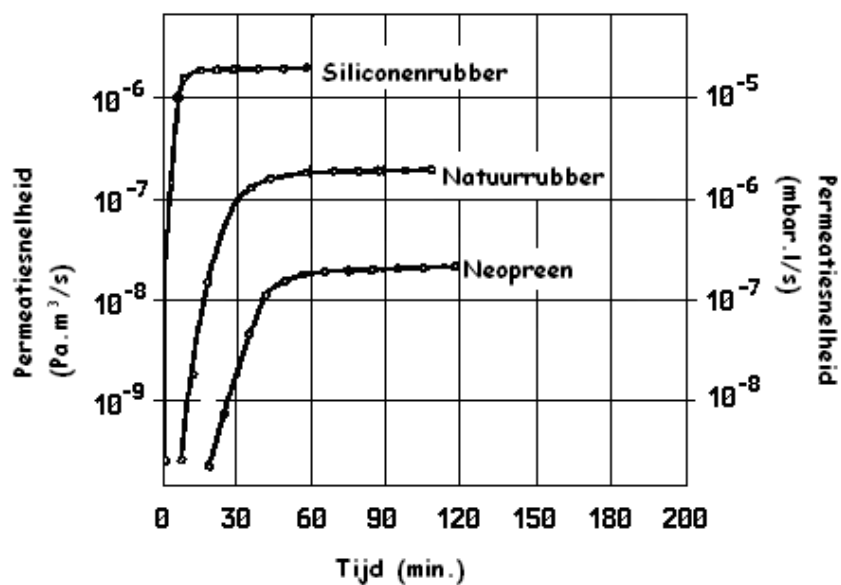
Tabel 6.1 geeft een overzicht van de verschillende stromingen.

Tabel 6.1: Lekgroottes en verband tussen het massadebiet en de druk stroomopwaarts (p_1) en stroomafwaarts (p_2). [26]

	Stroming			
	Turbulent	Laminair	Moleculair	Permeatie
Lekgrootte [cm ³ /s]	$> 10^{-2}$	$10^{-1} - 10^{-6}$	$< 10^{-5}$	Afh. Van de materiaaldikte
Massadebiet evenredig met:	$\sqrt{(p_1^2 - p_2^2)}$	$(p_1^2 - p_2^2)$	$(p_1 - p_2)$	$(p_1 - p_2)$

6.2.3 Permeatie en diffusie

Permeatie is de doorloop van een fluïdum in, door en uit een vaste barrière die geen openingen bevat. Bij dit proces zijn, buiten diffusie, ook nog andere fenomenen zoals adsorptie, dissociatie, migratie en desorptie betrokken. Diffusie is een proces ten gevolge van de willekeurige beweging van deeltjes. Deze willekeurige beweging is het gevolg van de kinetische energie die deeltjes bezitten. Bij verschillen in concentratie leidt diffusie tot een netto verplaatsing van deeltjes van plaatsen met een hoge concentratie naar plaatsen met een lage concentratie.



Grafiek 6.1: Permeatiesnelheid in functie van de tijd.

Tritium zal via interstitiële diffusie in het materiaal diffunderen en zich zo verder verplaatsen tussen de atomen van het materiaal. Diffusie kan weergegeven worden door de Wet van Fick [24]:

$$J = -D \frac{dc}{dx}$$

Met daarin:

- J = aantal atomen die per eenheid van tijd door een eenheid van oppervlakte diffunderen ((atomen/s)/m²);
- D = diffusiecoëfficiënt (m²/s);
- $\frac{dc}{dx}$ = concentratiegradiënt ((atomen/m³)/m).

Permeatie door de wanden van een vat [28]

In het 'Savannah River National Laboratory' werd reeds een theoretische studie uitgevoerd i.v.m. vaten voor tritiumafval opslag. Het gaat hier om getritieerd afval in de vorm van 'Tritium Producing Burnable Rods' (TPBARs). Het tritiumafval is hier echter wel van andere oorsprong. Het is afkomstig van militaire toepassingen (andere concentratie, druk, materialen). Deze berekening dient louter om aan te tonen dat tritium gemakkelijk door een materiaal heengaat. Hiermee wordt nog maar eens aangetoond dat het belangrijk is om de juiste materialen te vinden om de vaten uit te vervaardigen, zodat niet alle tritium kan ontsnappen.

In Amerikaanse light water reactoren (LWR) wordt tritium geproduceerd voor defensie programma's door gebruik te maken van TPBARs. De TPBARs zijn geïnstalleerd in de LWR en bevatten lithium. Door een nucleaire reactie van lithium-6 met neutronen, afkomstig van fissiereacties, wordt er tritium gevormd. [27] Het tritium wordt opgevangen in de TPBARs door zirkonium of zircaloy getters. Nadien wordt tritium thermisch geëxtraheerd uit de TPBARs, maar er zal steeds een kleine hoeveelheid tritium in de TPBARs achterblijven. Dit afval wordt opgeslagen in een box die in een container wordt opgeslagen.

Er werd een evaluatie uitgevoerd over de permeatie van tritium doorheen de wanden en de lasnaden van de vaten. De analyse is gedaan in de veronderstelling dat alle tritium direct door de 'getters' wordt afgegeven als tritiumgas (= 'worst – case' scenario).

Het huidige ontwerp is een rechthoekig vat (zie Figuur 6.7), gemaakt uit SA-516 (grade 70 carbon steel). In de analyse wordt rekening gehouden met drie mogelijke permeatiewegen:

- tritium kan door permeatie door de wanden en de bodem van het vat ontsnappen. De wand en bodem zijn 33 cm dik. De oppervlakte die binnenin wordt blootgesteld aan het (hypothetische) tritiumgas is ongeveer 4,3 m³.

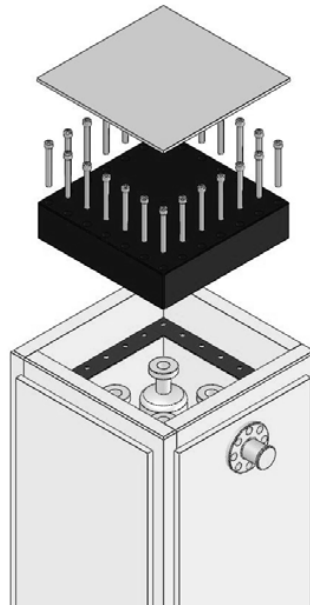
- Tritium kan door permeatie door het deksel heen gaan. Dit deksel is aan de bovenkant van de container gelast en heeft een oppervlakte van ongeveer 1,4 m² en is 2,5 cm dik.
- Als derde mogelijkheid zijn er de lasnaden. De lasnaad wordt verondersteld 1,3 cm diep en 1,3 cm breed te zijn en heeft een lengte van 478 cm (of 4 × 119,4 cm).

Permeabiliteit wordt gedefinieerd als:

$$\Phi \equiv D \times S$$

Waarin:

- D = diffusie van tritium in het materiaal (cm² materiaal/s);
- S = oplosbaarheid (cm³ H₂ [STP]/cm³ materiaal);
- Φ = permeabiliteit (cm³ H₂ [STP]/s.cm materiaal).



Figuur 6.7: Vat om tritiumafval in op te slaan.

De maximale permeatiesnelheid door een materiaal met dikte L wordt weergegeven door de flux (bij steady -state, evenwicht):

$$Flux = \frac{\Phi}{L} \quad (\text{cm}^3 \text{ H}_2 \text{ [STP]}/\text{s.cm}^2 \text{ materiaal})$$

De flux is de stroom van tritium (door permeatie) per oppervlakte-eenheid en per tijdseenheid. Door de snelle diffusie van waterstofisotopen in dit materiaal, wordt het evenwicht al bereikt na 1 week bij 33 cm dikke wanden. Dit wil zeggen dat de permeatiesnelheid dan maximaal is en verder constant blijft. Daarom beschrijven evenwichtsvergelijkingen de permeatie doorheen de jaren zeer accuraat.

De diffusie van waterstofisotopen in ijzer wordt voorgesteld door:

$$D = D_0 \times e^{\frac{-Q}{R.T}}$$

Waarin:

- D_0 = diffusiecoëfficiënt;
- Q = activatieënergie;
- R = gasconstante;
- T = absolute temperatuur (K).

De oplosbaarheid van waterstofisotopen wordt weergegeven door:

$$S = S_0 \times \sqrt{p} \times e^{\frac{-\Delta H}{R.T}}$$

Waarin:

- S_0 = oplosbaarheidsconstante;
- p = partiële druk van de opgeloste stof (atm);
- ΔH = enthalpie van de oplossing.

De constanten Q , D_0 , S_0 en ΔH worden verondersteld (ongeveer) dezelfde te zijn als de waarden van waterstof voor ijzer. Deze veronderstelling is gebaseerd op het gelimiteerde aantal studies betreffende diffusie van waterstof in ijzerlegeringen. De meeste legeringselementen verminderen de waterstofdifusie of hebben geen effect.

Verdere informatie voor het berekenen van de permeatie:

- Berekeningen hebben aangetoond dat de maximum temperatuur binnenin de box 93 °C bedraagt en aan de binnenwanden 79 °C. Er zal een berekening gebeuren van de permeatie bij beide temperaturen.
- Het afval in het vat zal een activiteit hebben van $4,43 \times 10^{15}$ Bq (119700Ci). (Dit is experimenteel bepaald.)
- 20% van de box zal vrij zijn, dit zal ingenomen worden door het (hypothetische) tritiumgas (V_1). De hoeveelheid tritium bij standaardomstandigheden in cm^3 (V_2) is de hoeveelheid tritium in Ci gedeeld door 2,589. [5]

De partiële druk van tritium binnenin de container zal gereduceerd worden door tritium die verdwijnt door permeatie en door radioactief verval.

Er werd gevonden dat bij 93 °C alle tritium door permeatie uit de box verdwenen is na 17 jaar en bij 79 °C na 24 jaar. Het is duidelijk dat er moet gezocht worden naar boxen die vervaardigd zijn uit betere materialen zodat het tritium langer kan opgeslagen worden. [28]

In het voorgaande werd beschreven en afgeleid, hoe de permeatie van tritium doorheen de wanden en het deksel van een afvalvat voor TPBARs kan verlopen.

In het volgende deel zal een theoretische berekening uitgevoerd worden over de permeatie doorheen een afdichting. Dit om na te gaan of er in de proeven rekening moet gehouden worden met permeatie.

Theoretische berekening van de permeatie van tritium doorheen de afdichtingen

Hieronder volgt een theoretische berekening van een afdichting. Als materiaal wordt een ring uit RVS 304 gebruikt. D_0 en ΔE_D zijn waarden voor de diffusie van tritium in RVS 304. Voor de oplosbaarheid van tritium in RVS 304 waren geen waarden te vinden, daarom wordt gebruik gemaakt van waarden voor de oplosbaarheid van waterstof in RVS 304.

Gegevens:

- $D_0 = 1,24 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2/\text{s}$,
- $\Delta E_D = 13,6 \text{ kcal/mol}$, [29]
- $S_0 = 8,60 \times 10^{-3} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 \text{ (STP)} / \text{cm}^3 \text{ RVS} \cdot \sqrt{\text{Pa}}$,
- $\Delta E_S = 2,3 \text{ kcal/mol}$, [30]
- $R = 1,987 \text{ cal/K.mol}$.

Berekening partiële druk HT in gasfles

De druk op de gasfles bedraagt ongeveer 80 bar. In de gasfles is 21,46% H_2 aanwezig, waarvan 0,00278% HT. Hieruit kan de partiële druk van tritium in de fles berekend worden:

$$p_{HT} = 8000000 \text{ Pa} \times 0,2146 \times 0,0000278 = 47,73 \text{ Pa}$$

In de flenzen heerst een overdruk van 1 bar. Dit betekent dat de druk in de flenzen 40 keer lager is dan in de gasfles. Hieruit kan de partiële druk van HT berekend worden in de flenzen:

$$p_{HT, \text{flens}} = \frac{47,73 \text{ Pa}}{40} = 1,20 \text{ Pa}$$

Diffusie

Diffusie van tritium in RVS 304 wordt berekend via volgende formule:

$$D = D_0 \times e^{\frac{-Q}{R.T}}$$

D_0 , Q , R zijn gegeven constanten.

Alhoewel de constanten gegeven zijn voor hogere temperaturen, wordt de diffusie hier toch berekend bij kamertemperatuur, dit is de temperatuur waarbij de proeven uitgevoerd zijn.

$$D = 1,24 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2 \text{ RVS} / \text{s} \times e^{-13600 \text{ kcal} / \text{mol} / (1,987 \text{ Kcal} / \text{K} \cdot \text{mol} \times 293 \text{ K})}$$

$$D = 8,88 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2 \text{ RVS} / \text{s}$$

Oplosbaarheid

De oplosbaarheid van waterstof in RVS 304 wordt berekend via volgende formule:

$$S = S_0 \times e^{\frac{-\Delta H}{R \cdot T}}$$

Rekening houdend met de partiële druk, wordt volgende formule bekomen:

$$S = S_0 \times \sqrt{p} \times e^{\frac{-\Delta H}{R \cdot T}}$$

S_0 , ΔH en R zijn constanten die gegeven zijn.

$$S = 8,60 \cdot 10^{-3} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{cm}^3 \text{ RVS} \cdot \sqrt{\text{Pa}} \times \sqrt{1,20 \text{ Pa}} \times e^{\frac{-2300 \text{ kcal} / \text{mol}}{1,987 \text{ cal} / \text{mol} \cdot \text{K} \times 293 \text{ K}}}$$

$$S = 1,81 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{cm}^3 \text{ RVS}$$

Permeatie

Permeatie is de vermenigvuldiging van de diffusie en de oplosbaarheid:

$$\Phi = D \times S$$

De permeatie is dan:

$$\Phi = 8,82 \cdot 10^{-13} \text{ cm}^2 / \text{s} \times 1,81 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{cm}^3 \text{ RVS}$$

$$\Phi = 1,60 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{s} \cdot \text{cm} \text{ RVS}$$

Flux

De flux is de stroom van tritium (door permeatie) per oppervlakte-eenheid en per tijdseenheid.

$$\text{Flux} = \frac{\Phi}{L}$$

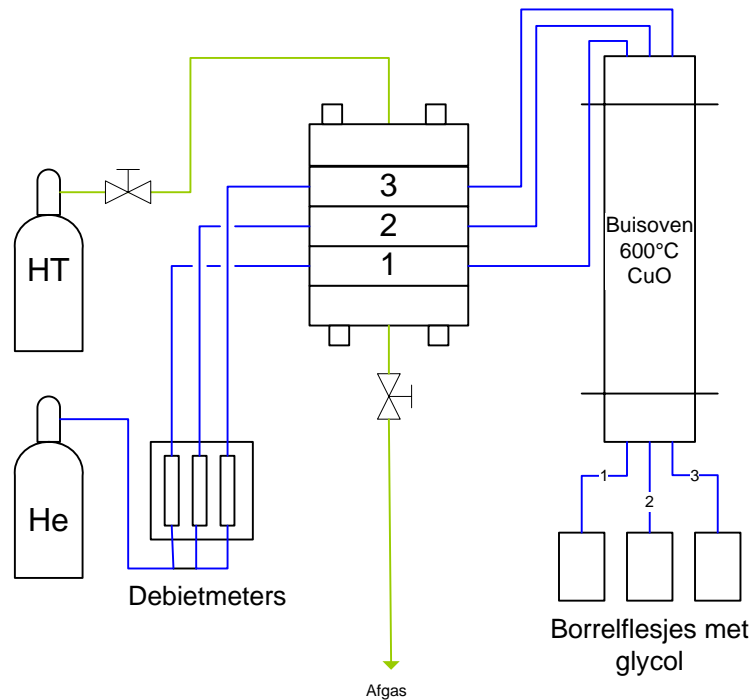
Om de flux te berekenen moet de permeatie gedeeld worden door de doorsnede van de ring. In de proeven wordt gebruik gemaakt van metalen ringen met een doorsnede van 0,478 cm. Deze afmeting wordt ook in de berekeningen gebruikt.

$$\text{Flux} = \frac{1,60 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{s} \cdot \text{cm} \text{ RVS}}{0,478 \text{ cm}} = 3,35 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^3 \text{ H}_2 (\text{STP}) / \text{s} \cdot \text{cm}^2 \text{ RVS}$$

De berekende flux is zéér klein. Hieruit kan besloten worden dat bij de testen die maar 7 dagen duren en met een druk van 2 bar, geen rekening dient gehouden te worden met permeatie van HT doorheen de metalen afdichtingen.

Over permeatie van tritium door elastomeren bestaan maar weinig gegevens in de literatuur. Er kan verondersteld worden dat een deel van de lek bij elastomere afdichtingen veroorzaakt wordt door permeatie.

6.3 Testopstelling SCK

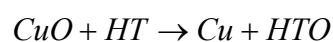


Figuur 6.8: Schematische voorstelling van de testopstelling.

Figuur 6.8 geeft een eenvoudige schematische voorstelling weer van de testopstelling. Er worden twee gasflessen gebruikt:

- een gasfles met testgas voor het testen van afdichtingen op tritiumlekken. Deze gasfles bevat HT-gas, waterstofgas en helium.
- De tweede gasfles is gevuld met het dragergas, helium.

Het testgas wordt binnenin de holte van de flenzen gebracht, waar het op een constante druk wordt gehouden door de kraan na de flenzen te sluiten. Het helium (dragergas) wordt verdeeld over de verschillende flenzen (met de te testen afdichtingen). Het debiet van het gas wordt gemeten met rotameters. Als er HT lekt via de dichtingen komt dit terecht in de dragergasstroom. Deze stroom wordt over CuO geleid en tegelijkertijd verwarmd in een buisoven.



HT wordt daarbij omgezet naar HTO. Dit kan enkel plaatsvinden in een inerte atmosfeer (helium). De inerte atmosfeer is nodig omdat bij vorige experimenten is aangetoond, dat lucht de werking van het CuO stoort en dat de omzetting dan niet goed verloopt.

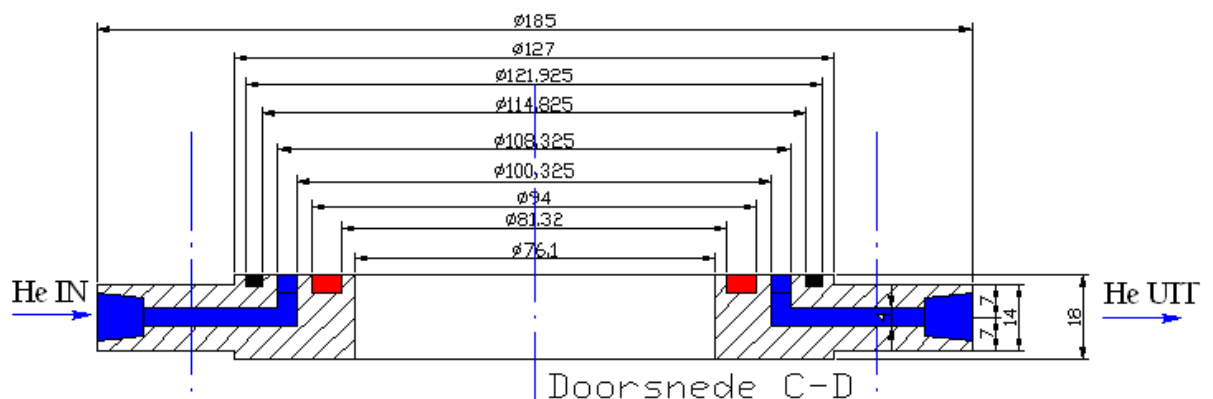
Het gas wordt naar een glycoloplossing gestuurd, waar het HTO in wordt opgevangen. Na een week wordt de proef beëindigd en wordt een staal genomen van de glycoloplossing. Dit staal wordt vervolgens gemeten in de vloeistofscintillatieteller.



Figuur 6.9: Links: de flenzen. Rechts: rotameters, flenzen en borrelflesjes.

In werkelijkheid staan er twee maal drie testflenzen in serie, zo kunnen zes afdichtingen tegelijkertijd getest worden.

In de eerste vier flenzen (blindflenzen niet meegeteld) worden rubberen o-ringen gestoken. De laatste twee flenzen zijn voorzien van een bredere groef, hierin worden de metalen c-ringen gebracht.

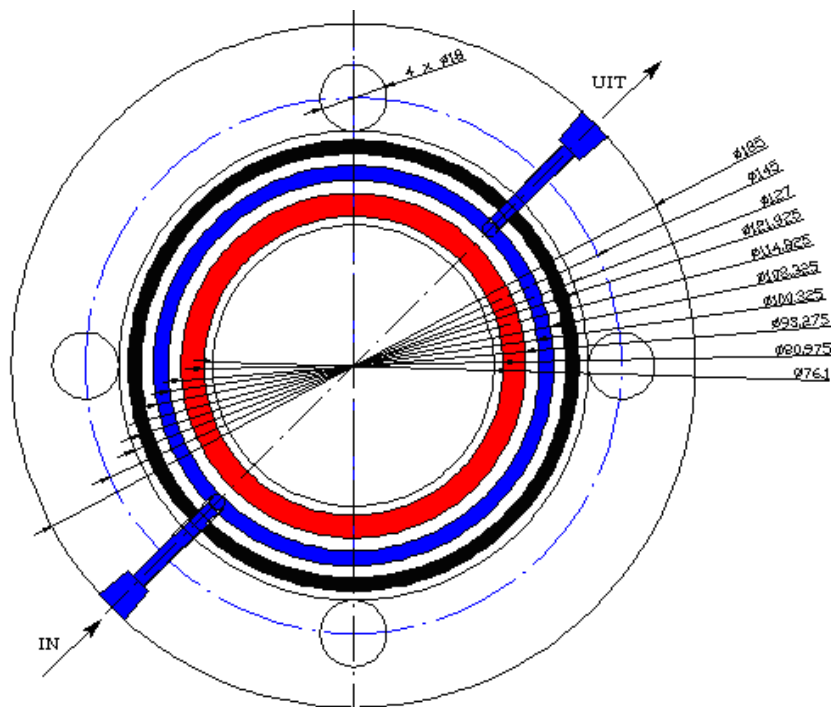


Figuur 6.10: Doorsnede van een flens voor een metalen c-ring. (in mm) (zie ook bijlagen)

In Figuur 6.10 is een dwarsdoorsnede van een flens voor een c-ring weergegeven. De rode groef is de groef waar de c-ring (te testen afdichting) in zit. Door de blauwe groef loopt het

dragergas om eventuele lekken op te vangen. In de zwarte groef ligt de afdichtingsring die ervoor zorgt dat er geen gas naar buiten of naar binnen kan ontsnappen.

Uit de bestaande literatuur of uit de informatie van de producent zijn geen gegevens bekend over het lekken van tritium langs afdichtingen, dus voor de buitenste ring is niet gekend of deze ook HT kan lekken. Het HT dat door de eerste ring lekt zou dus door de tweede naar buiten kunnen lekken. Deze situatie is weinig waarschijnlijk omdat er in de tweede groef continu een dragergas stroomt, dit zal alle gelekte HT meenemen.



Figuur 6.11: Bovenaanzicht flens met groeven.

De groeven moesten steeds voorzien worden van een wandruwheid lager dan $0,8 \mu Ra$ om te voorkomen dat de afdichtingen beschadigd worden.

De afmetingen van de ringen zijn:

- o-ringen: $91,92 \text{ mm} \times 5,33 \text{ mm}$,
- c-ringen: $81,92 \text{ mm} \times 4,78 \text{ mm}$.

6.3.1 Afdichtingen

Voor de afdichtingen worden verschillende materialen gebruikt. Hierop volgt een opsomming met de gebruikte materialen en de reden van de keuze van deze materialen.

1. Elastomere o-ringen

De o-ringen zijn volledig vervaardigd uit het elastomeer.

- *Nitrielerubber* is een standaardrubber en dus gemakkelijk te verkrijgen. Het is interessant om de andere rubbers met deze te vergelijken.
- *Chloropreenrubber (neopreen)* wordt ook bij Belgoprocess gebruikt en is gekend om zijn goede resistentie tegen straling.
- *Fluorcarbonrubber (Viton®)* staat bekend om zijn chemische resistentie.
- *Polyurethaanrubber* werd gekozen aan de hand van de brochure van ERIKS. Hier wordt van gezegd dat het een goede stralingsresistentie heeft en niet permeabel is voor gassen.
- *Epichlorohydrinerubber* heeft de eigenschap dat het gasdoorlaatbaar is.
- *Siliconerubber* werd gekozen aan de hand van de brochure van ERIKS. Dit rubber zou een goede stralingsweerstand hebben.
- *Butylrubber* heeft dezelfde eigenschap als epichlorohydrinerubber, het is gasdoorlaatbaar.

2. Metalen c-ringen

De c-ringen bestaan uit Inconel X750 met daarrond één van volgende coatings:

- *Koper* is gekozen omwille van de goede bestendigheid tegen straling.
- *Zilver of*
- *Aluminium.*

Zilver en aluminium zijn gekozen in overleg met ERIKS.

6.3.2 Tritiumbron

Als tritiumbron wordt een gasfles gebruikt, gevuld met een klein percentage HT-gas. Naast HT is er ook nog waterstof en helium in de gasfles aanwezig. Er kan berekend worden hoeveel radioactiviteit de fles nog bevat. Nadien wordt ook nog een meting gedaan om te zien hoeveel radioactiviteit er in werkelijkheid nog aanwezig is.

In 1999 is de samenstelling van het gas bepaald, het gas bevatte toen:

- 21,46% waterstof, waarvan 0,00278% HT;
- 78,54% helium.

Het aantal mol HT

$$1 \text{ mol} \times 0,2146 \times 2,78 \cdot 10^{-5} = 5,97 \cdot 10^{-6} \text{ mol}$$

1 mol gas bevat $5,97 \cdot 10^{-6}$ mol HT.

Activiteit 1999

De activiteit van HT kan berekend worden a.d.h.v. volgende formules:

$$A = \lambda \times N \quad \text{met } N = \text{aantal radioactieve kernen. (1 mol} = 6,02 \cdot 10^{23} \text{ deeltjes)}$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{12,3y \times 365 \text{ dagen/jaar} \times 24 \text{ h/dag} \times 3600s} = 1,79 \cdot 10^{-9} / s$$

$$A_{1999} = 1,79 \cdot 10^{-9} / s \times 6,02 \cdot 10^{23} \text{ deeltjes/mol HT} = 1,08 \cdot 10^{15} \text{ Bq/mol HT}$$

Dit is de activiteit die oorspronkelijk in de fles zat, in het jaar 1999.

1 mol gas uit de gasfles bevatte $5,97 \cdot 10^{-6}$ mol HT. Met dit gegeven kan de specifieke activiteit berekend worden:

$$A_{1 \text{ mol gas } 1999} = 5,97 \cdot 10^{-6} \text{ mol HT/mol gas} \times 1,08 \cdot 10^{15} \text{ Bq/mol HT} = 6,43 \cdot 10^9 \text{ Bq/mol gas}$$

Activiteit 2008

Na 9 jaar is een deel van het tritium vervallen en zal de activiteit van het gas gedaald zijn. Dit kan berekend worden a.d.h.v. de vervalwet:

$$A_{2008} = A_{1999} \times e^{-\lambda \cdot t}$$

$$A_{2008} = 6,43 \cdot 10^9 \text{ Bq/mol gas} \times e^{\frac{-\ln 2}{12,34 \text{ jaar}} \times 9 \text{ jaar}} = 3,88 \cdot 10^9 \text{ Bq/mol gas}$$

$$A_{2008} (\text{in Bq/l gas}) = \frac{3,88 \cdot 10^9 \text{ Bq/mol}}{22,4 \text{ mol/l}} = 1,73 \cdot 10^8 \text{ Bq/l gas}$$

De fles staat op 80 bar (overdruk). Voor en na de flenzen zit er een kraan in de gasleiding. Op de eerst kraan staat een drukketer, zo kan de druk binnenin de flenzen geregeld worden.

6.3.3 Druk in de kamer van de flens

Binnen de flenzen is een holle ruimte, gevuld met het testgas. In het vorige hoofdstuk (4.2.1) werd een theoretische berekening uitgevoerd over de drukopbouw in het vat. Deze berekening was sterk vereenvoudigd maar gaf toch een goed idee over de drukopbouw. De druk in het vat zou amper stijgen, wat voor de metingen zou betekenen dat er gewerkt kan worden bij atmosferische druk. Toch wordt gebruik gemaakt van een kleine overdruk (1 bar) omdat een lek afhankelijk is van de druk. Bij een grotere druk zal het lek sneller te meten zijn.

6.3.4 Tritiummeting

Als de proef is afgelopen, worden stalen van de glycoloplossing genomen. Er wordt van ieder flesje 1 ml staal genomen en dit wordt aangelengd met 10 ml scintillatievloeistof. Als scintillatievloeistof wordt gebruik gemaakt van een mengsel:

Poly (ethyleenglycol) mono (4-nonyl-fenyl)-ether.

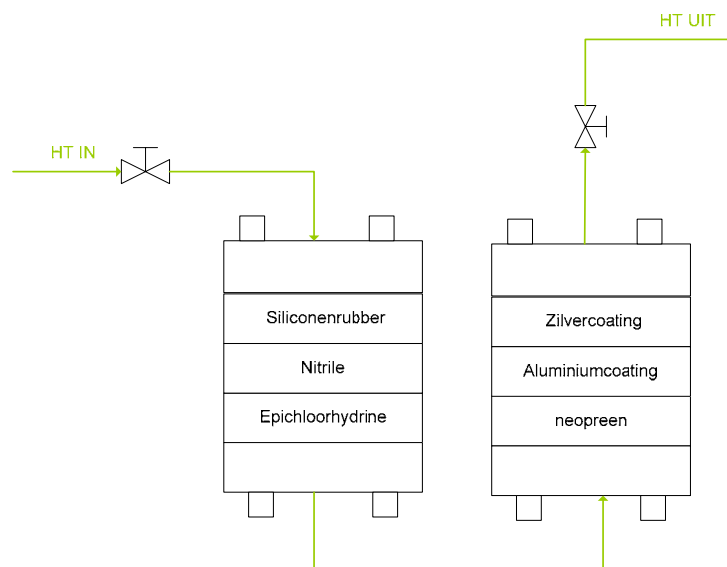
Als blanco wordt 1 ml glycol aangelengd met 10 ml scintillatievloeistof.

7 Resultaten

In de eerste twee proeven werd gebruik gemaakt van 6 testflenzen, 4 voor elastomere o-ringen en 2 voor metalen c-ringen. (De metalen en elastomere afdichtingen kunnen niet in dezelfde flens getest worden omdat de vereiste groef verschillend is.) In de laatste twee proeven wordt gebruik gemaakt van 4 flenzen voor elastomere o-ringen.

7.1 Proef 1

In de eerste proef worden 4 elastomere o-ringen en 2 metalen c-ringen getest. De testflenzen worden telkens per 3 in serie gemonteerd, met boven- en onderaan telkens een blindflens. In de eerste drie testflenzen komen elastomere o-ringen: epichloorhydrine-, nitrile- en siliconenrubber. In de tweede groep flenzen komt 1 elastomere o-ring voor, nl. neopreen en 2 metalen c-ringen, nl. één met een aluminium- en één met een zilvercoating.



Figuur 7.1: Schematische voorstelling opbouw flenzen met de te testen afdichtingen in proef 1.

Instellingen

De eerste proef gebeurde onder volgende omstandigheden:

- $p_{HT} = 2$ bar,
- $q_{He} = 4$ l/h,
- $T_{oven} = 600$ °C,
- $m_{glycol} = 200$ g,
- buitenste afdichtingsring = Viton® o-ring.

Metingen

Na 7 dagen, kan de proef beëindigd worden. Er wordt een staal genomen van de glycoloplossing met de HTO in. Dit staal wordt in de vloeistofscintillatieteller gebracht en gemeten. De metingen zijn uitgedrukt in desintegraties per minuut (DPM) en weergegeven in Tabel 7.1.

Tabel 7.1: Meetresultaten proef 1.

Materiaal	Meting [DPM]
Epichlorohydrinerubber (ECO)	121
Nitrilerubber (NBR)	791
Siliconenrubber (VMQ)	125
Neopreen (CR)	4297
X750 met aluminium coating (ALU)	54
X750 met zilver coating (S70)	61
Blanco	90

Berekeningen

Met de meetresultaten kan de lekgruotte van HT bepaald worden. In Tabel 7.2 worden de resultaten van alle berekeningen weergegeven, om deze te verduidelijken wordt hier een berekening volledig uitgevoerd voor **epichlorohydrinerubber (ECO)**.

Aftrek blanco

Om een juiste waarde voor de activiteit te hebben, moet de waarde van de blanco er afgetrokken worden.

$$\text{Aftrek blanco} = 121 \text{ DPM} - 90 \text{ DPM} = 31 \text{ DPM}$$

Activiteit per gram

DPM staat voor desintegraties per minuut. Voor omzetting naar Becquerel (desintegraties per seconde) moet de meetwaarde (na aftrek van blanco) worden gedeeld door 60. Bij elke meting wordt 1 ml staal aangelengd met 10 ml scintillatievloeistof. De bekomen waarde bij deze berekening is dus de activiteit per ml.

$$A_{per\ ml} = \frac{31\ DPM}{60\ s/min} = 0,52\ Bq/ml$$

De dichtheid van glycol is 1,1 ml/g, hieruit kan de activiteit per gram berekend worden.

$$A_{per\ g} = 0,52\ Bq/ml \times 0,91 = 0,47\ Bq/g$$

Totale activiteit

De massa van de glycol is 200 g, hieruit kan de totale activiteit, die tijdens de proeven is vrijgekomen, berekend worden.

$$A_{total} = 0,47\ Bq/g \times 200\ g = 94\ Bq$$

Groote tritiumlek

Uit de totale activiteit kan de lekgroote (in ml) berekend worden, m.b.v. de activiteit (per l) van de gasfles.

$$A_{gasfles} = 1,73 \cdot 10^8\ Bq/l \quad [6.3.2]$$

$$Lekgroote\ HT = \frac{94\ Bq}{1,73 \cdot 10^8\ Bq/l} = 5,4 \cdot 10^{-7}\ l$$

Uit de lekgroote kan een besluit worden getrokken welke ring de beste lekdichtheid heeft t.o.v. tritium.

Tabel 7.2: Berekening lekgroote HT proef 1.

Materiaal	Aftrek Blanco [DPM]	Activiteit per gram [Bq/g]	Totale activiteit [Bq/200g]	Groote tritiumlek [l]
ECO	31	0,47	94	5,4E-04
NBR	701	10,63	2126	1,2E-02
VMQ	35	0,53	106	5,8E-04
CR	4207	63,81	12762	7,0E-02
ALU	0	0	0	0
S70	0	0	0	0

Besluit

Uit deze proef is duidelijk dat neopreen niet geschikt is om te gebruiken als afdichting voor afvalvaten met tritiumafval in. Epichlorohydrinerubber heeft de eigenschap van lekdichte rubber bevestigd en het lek bij de siliconenrubber is verassend klein.

De metalen c-ringen vertonen beiden na zeven dagen nog geen tritiumlek. De metalen ringen hebben wel één groot nadeel; de ringen zijn moeilijk samendrukbaar. Dit wil zeggen dat de flenzen met de metalen c-ringen, zeer moeilijk dicht te draaien zijn.

7.2 Proef 2

In de tweede proef worden de andere vier andere elastomere o-ringen getest, nl. Viton®75, Viton®90, butylrubber en polyurethaanrubber. Er worden ook nog twee metalen c-ringen getest, deze met een zilver- en een kopercoating. Viton wordt getest in 2 verschillende hardheden, 75 en 90 °Shore A. De testopstelling is dezelfde als in proef 1. Viton® 75, Viton® 90 en butylrubber zitten in de eerste groep van drie testflenzen, polyurethaanrubber zit bij de metalen c-ringen in de tweede groep van testflenzen.

Instellingen

De tweede proef gebeurde onder volgende omstandigheden:

- $p_{HT} = 2 \text{ bar}$,
- $q_{He} = 4 \text{ l/h}$,
- $T_{oven} = 600 \text{ °C}$,
- $m_{glycol} = 200 \text{ g}$,
- buitenste afdichtingsring = Viton® o-ring.

Metingen

Na zeven dagen wordt de proef beëindigd en wordt 1 ml staal genomen van de glycoloplossing. De stalen worden in de vloeistofscintillatieteller gebracht, de resultaten staan weergegeven in Tabel 7.2.

Tabel 7.3: Meetresultaten proef 2.

Materiaal	Meting [DPM]
Viton® 75 °Shore A	109
Viton® 90 °Shore A	151
Butylrubber (IIR)	82
Polyurethaanrubber (PUR)	193
X750 met zilver coating (S70)	55
X750 met koper coating (Cu)	43
Blanco	90

Berekeningen

De resultaten in Tabel 7.4 zijn berekend op dezelfde wijze als bij proef 1.

Tabel 7.4: Berekening lek grootte HT proef 2.

Materiaal	Aftrek Blanco [DPM]	Activiteit per gram [Bq/g]	Totale activiteit [Bq/200g]	Grootte tritiumlek [ml]
Viton® 75	8	0,12	24,27	1,33E-04
Viton® 90	50	0,76	151,67	8,29E-04
IIR	0	0	0	0
PUR	92	1,40	279,07	1,52E-03
S70	0	0	0	0
Cu	0	0	0	0

Besluit

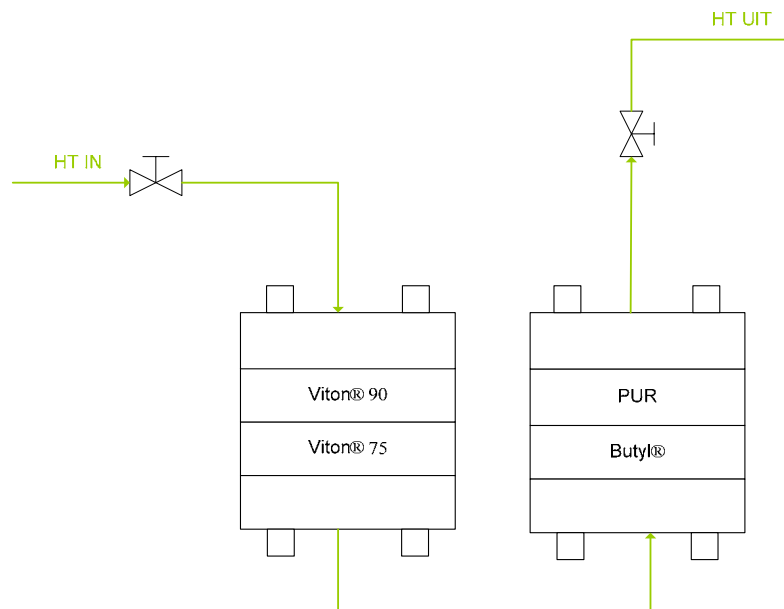
Er is een duidelijk verschil te zien tussen de twee verschillende Viton® ringen. De zachtere ring (75° Shore A) sluit beter af. Dit is te verklaren doordat deze ring makkelijker indrukbaar is en zich beter zal aanpassen aan oneffenheden in de groef van de flens. Bij een kleine overdruk aan de binnenkant van de o-ring is het dus beter om te opteren voor een zachtere rubber. Butylrubber is het beste elastomeer voor deze toepassing. De metalen ringen vertonen weer geen tritiumlek.

Na twee proeven kan al besloten worden dat de metalen c-ringen beter afsluiten t.o.v. tritium dan de elastomere o-ringen. De metalen ringen lekken niet, dit in tegenstelling tot de meeste elastomere ringen. De metalen c-ringen hebben geen detecteerbare tritiumlek, daarom is er

besloten om in de volgende proeven enkel nog elastomere o-ringen te testen. Ook zal het gemakkelijker worden om de flenzen dicht te draaien als de metalen ringen niet mee getest worden.

7.3 Proef 3

Proef drie is een herhaling van proef twee. Dezelfde elastomere afdichtingen worden getest onder identieke omstandigheden, enkel de metalen c-ringen zijn weggelaten. In de testflenzen waar de metalen c-ringen zaten kunnen geen elastomere o-ringen getest worden omdat de groef en de afdichting, andere afmetingen hebben. De testflenzen worden nu per twee opgesteld. Er kunnen dus vier elastomere o-ringen tegelijkertijd getest worden.



Figuur 7.2: Schematische voorstelling opbouw flenzen met de te testen afdichtingen in proef 3.

Instellingen

De derde proef gebeurde onder volgende omstandigheden:

- $p_{HT} = 2 \text{ bar}$,
- $q_{He} = 4 \text{ l/h}$,
- $T_{oven} = 600 \text{ }^\circ\text{C}$,
- $m_{glycol} = 200 \text{ g}$,
- buitenste afdichtingsring = Viton® o-ring.

Metingen

Na zeven dagen wordt de proef beëindigd en wordt er 1 ml staal genomen van de glycoloplossing. De stalen worden in de vloeistofscintillatieteller gebracht, dat geeft de volgende resultaten:

Tabel 7.5: Meetresultaten proef 3.

Materiaal	Meting [DPM]
Viton® 75	159
Viton® 90	244
IIR	203
PUR	193
Blanco	149

Berekeningen

De resultaten in Tabel 7.6 zijn berekend op dezelfde wijze als bij proef 1.

Tabel 7.6: Berekening lek grootte HT proef 3.

Materiaal	Aftrek Blanco [DPM]	Activiteit per gram [Bq/g]	Totale activiteit [Bq/200g]	Grootte tritiumlek [ml]
Viton® 75	10	0,15	30,33	1,66E-04
Viton® 90	95	1,44	288,17	1,57E-03
IIR	54	1,40	279,07	1,52E-03
PUR	92	92	1,53	9,10E-03

Besluit

De resultaten verschillen wel wat van de resultaten van proef 2, maar blijven wel in grote lijnen gelijk: Viton® 75 en butylrubber hebben de laagste lek grootte.

7.4 Proef 4

In proef 4 wordt proef 1 herhaald, maar zonder de metalen c-ringen. De opstelling zal, zoals in proef 3, bestaan uit vier testfleszen in twee series van twee. In de eerste reeks fleszen zitten siliconenrubber en epichlorohydrinerubber, in de tweede reeks zitten nitrilerubber en neopreen.

Instellingen

De vierde proef gebeurde onder volgende omstandigheden:

- $p_{HT} = 2 \text{ bar}$,
- $q_{He} = 4 \text{ l/h}$,
- $T_{oven} = 600 \text{ }^\circ\text{C}$,
- $m_{glycol} = 200 \text{ g}$,
- buitenste afdichtingsring = Viton® o-ring.

Metingen

Na stalname van de glycoloplossingen, worden de flesjes in de vloeistofscintillatieteller gebracht en gemeten.

Tabel 7.7: Meetresultaten proef 4.

Materiaal	Meting [DPM]
VMQ	268
ECO	142
NBR	180
CR	2996
Blanco	105

Berekeningen

De resultaten in Tabel 7.8 zijn berekend op dezelfde wijze als bij proef 1.

Tabel 7.8: Berekening lek grootte HT proef 3.

Materiaal	Aftrek Blanco [DPM]	Activiteit per gram [Bq/g]	Totale activiteit [Bq/200g]	Grootte tritiumlek [ml]
VMQ	163	2,47	494,43	2,70E-03
ECO	37	0,56	112,23	6,13E-04
NBR	75	1,14	227,50	1,24E-03
CR	2891	43,85	8769,37	4,79E-02

Besluit

De lek grootte van NBR verschilt sterk met deze van de eerste proef. Ook de andere waarden wijken wat af. Er kan wel gesteld worden dat neopreen een zeer slechte dichting voor tritium is en dat ECO een goede dichting is.

Tijdens de proeven is gebleken dat de manometers niet goed functioneren, ze zijn heel moeilijk te regelen en af te lezen.

7.5 Conclusie

Tabel 7.9: Samenvatting lekgrootten.

Materiaal	Grootte tritiumlek (gemiddelde) [ml]
Viton® 75	3,79E-04
IIR	4,48E-04
ECO	5,64E-04
Viton® 90	1,20E-03
VMQ	1,64E-03
PUR	1,35E-03
NBR	6,43E-03
CR	5,88E-02
S70	0
Cu	0
Al	0

Algemeen kan er gesteld worden dat de metalen c-ringen een grotere lektheid m.b.t. tritium vertonen dan de elastomere o-ringen.

Elastomere o-ringen kunnen het best gebruikt worden als de vaten voor een korte periode moeten worden opgeslagen. Dit heeft te maken met het feit dat de elastomeren na een periode van gemiddeld 15 jaar hun mechanische eigenschappen verliezen. De elastomere o-ringen zijn dan niet meer in staat een goede afdichting te verzekeren. Ook als de afvalvaten regelmatig geopend moeten worden, zijn de elastomere o-ringen een prima oplossing wegens hun (meestal) kleine blijvende vervorming.

Bij de elastomeren vertonen drie soorten goede resultaten, deze zijn Viton® 75 °Shore A, butyl- en epichlorohydrinerubber. Met deze proeven is bewezen dat het beter is om bij een kleine overdruk te opteren voor een zachtere rubber. De zachte rubber zal zich gemakkelijk aanpassen aan oneffenheden in de groeven waardoor minder vlug lekken zullen ontstaan. De resultaten van de siliconenrubber zijn beter dan verwacht en hoewel neopreen op Belgoproces veelvuldig gebruikt wordt, is het voor gebruik als afdichting voor een tritiumafvalvat af te raden.

Metalen ringen zijn geschikt voor lange opslagperioden, metalen verliezen hun mechanische eigenschappen echter niet zo vlug als elastomeren. Maar als de vaten dikwijls moeten geopend worden, zijn metalen afdichtingen geen optie. Er is tijdens dit experiment geen onderscheid kunnen gemaakt worden tussen de drie verschillende c-ringen (verschillende coatings).

8 Algemeen besluit

Het doel van deze masterproef was het maken van een eerste stap in het experimentele onderzoek van het SCK•CEN naar afvalvaten voor opslag van tritiumhoudend afval. Er werd gekozen om te starten met het testen van de afdichtingen op hun lektheid t.o.v. tritium. Om deze afdichtingen te kunnen testen werd een speciale opstelling met flenzen ontwikkeld.

Twee verschillende soorten afdichtingen werden getest; metalen c-ringen en elastomere o-ringen. Bij de metalen ringen werden verschillende coatings getest, een zilver-, koper- en aluminiumcoating. Bij de elastomeren werd gebruik gemaakt van 8 soorten: Viton®, butylrubber, neopreen, epichlorohydrinerubber, polyurethaanrubber, siliconenrubber en nitrilerubber.

In de opstelling werden de verschillende afdichtingen getest gedurende 7 dagen, telkens onder dezelfde omstandigheden. De opstelling bleek zeer goed te functioneren voor de lektesten en kan zeker in de toekomst verder gebruikt worden. Enkel het de debietmeters moeten vervangen worden omdat deze moeilijk te regelen waren en snel stuk gingen.

De metalen c-ringen vertoonden geen waarneembare tritium lekken. Tijdens de proeven is wel ondervonden dat de metalen afdichtingen als groot nadeel hebben dat ze moeilijk samendrukbaar zijn. Op laboschaal gaf dit problemen omdat de flenzen zeer moeilijk dicht te draaien zijn. In de veronderstelling dat dit bij de grote afvalvaten m.b.v. een machine kan gebeuren, zal dit probleem in de praktijk zich niet stellen. De metalen c-ringen kunnen ook enkel gebruikt worden indien de vaten gesloten blijven en niet opnieuw geopend moeten worden.

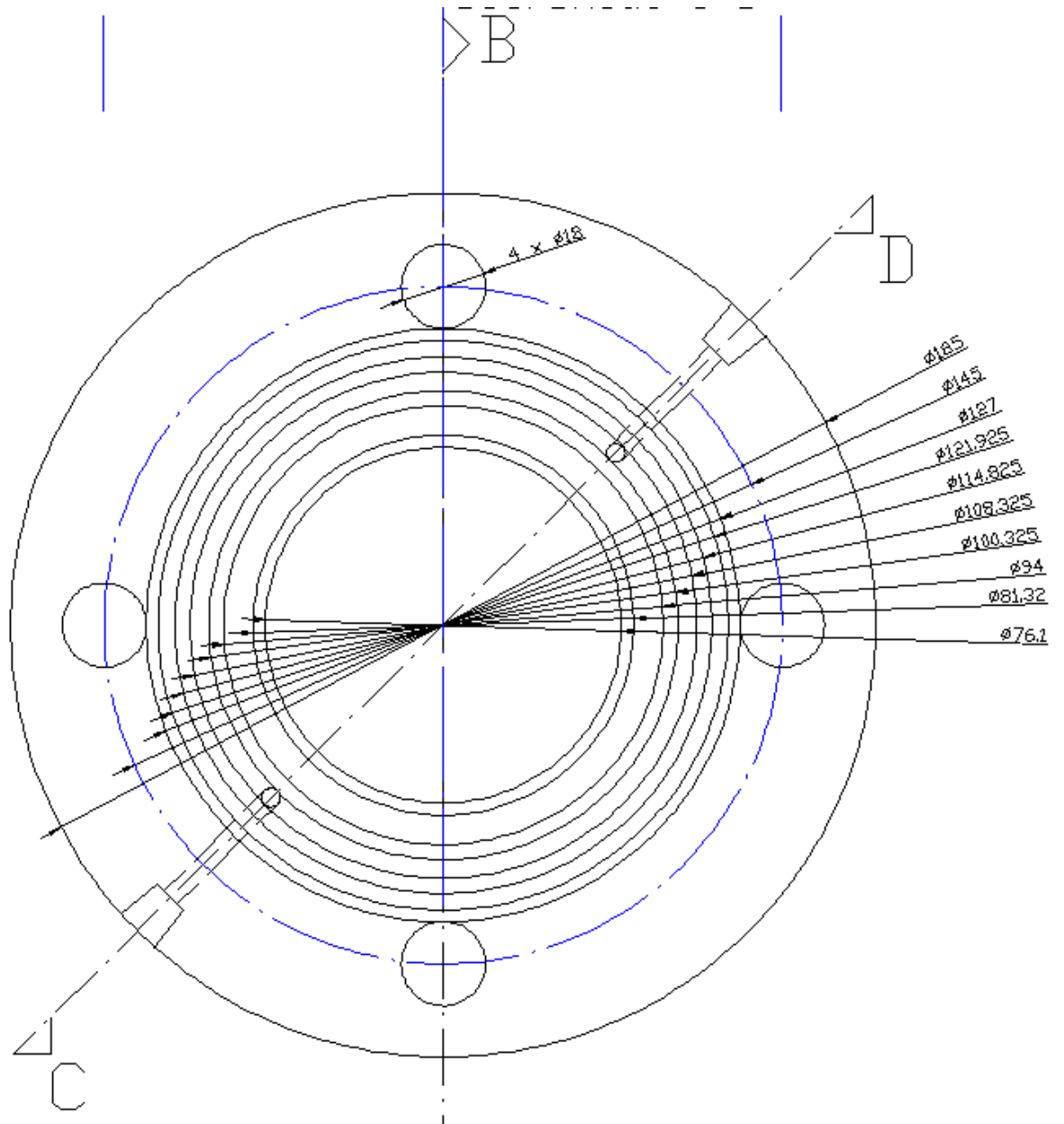
Bij de o-ringen was een groot verschil waar te nemen tussen de verschillende elastomeren. Neopreen gaf een zeer slecht resultaat, deze ring mag zeker niet gebruikt worden in een afvalvat. Anderzijds waren er drie zeer goede elastomere o-ringen bij, nl. butylrubber, Viton® 75 en ECO.

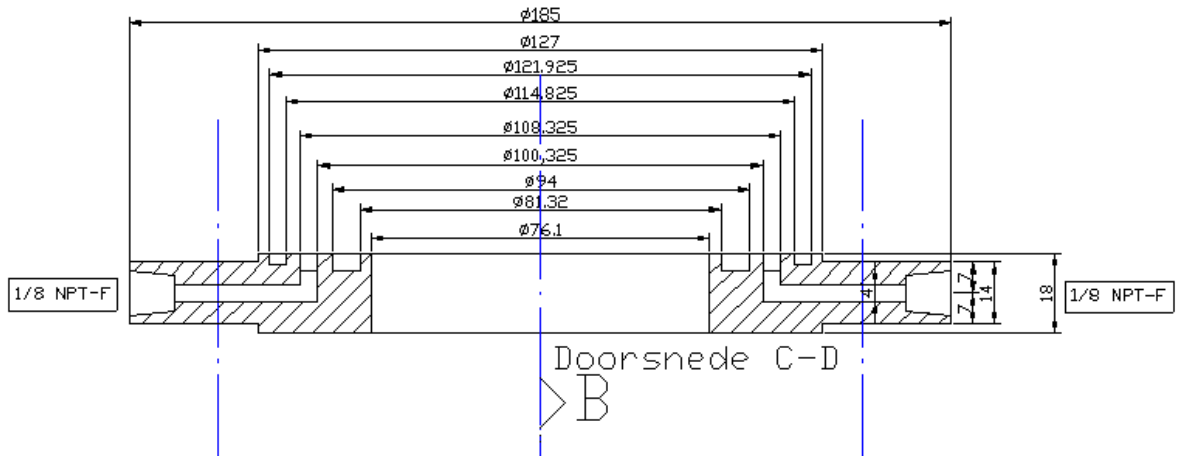
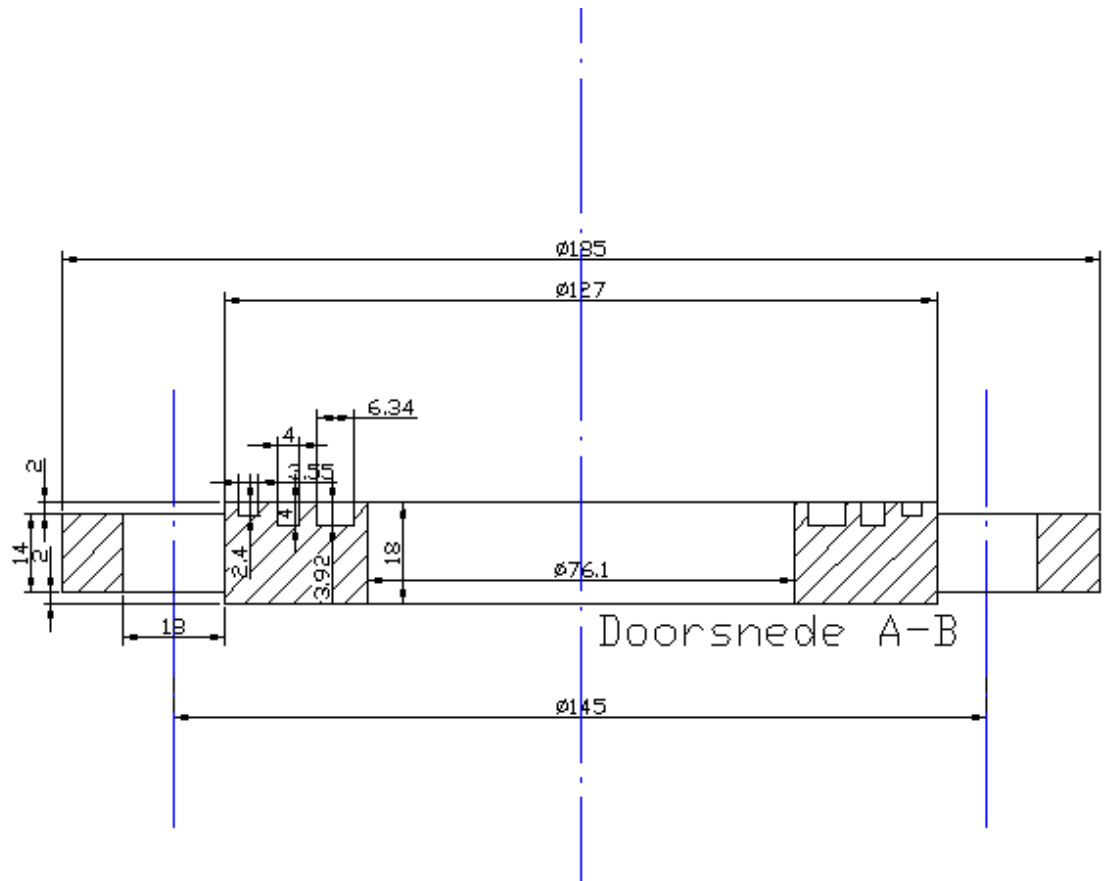
De spreiding op een aantal resultaten bij de elastomere o-ringen was zeer groot. Daarom is het aan te raden in de toekomst verdere metingen uit te voeren op de 3 beste o-ringen (butylrubber, Viton® 75 en ECO). Dit zou in dezelfde flenzen kunnen gebeuren. Waar nu vier verschillende ringen werden getest per proef, zouden er bijvoorbeeld vier dezelfde ringen per proef getest kunnen worden. De proeven moeten herhaaldelijk uitgevoerd worden zodat betrouwbare resultaten verkregen worden.

Alle metingen van de metalen c-ringen lagen onder de detectielimiet, d.w.z. dat geen onderscheid kan gemaakt worden tussen de verschillende coatings. Om een differentiatie te kunnen maken tussen de verschillende coatings is het nodig verdere proeven uit te voeren. Proeven over een langere periode of met een hogere gasdruk kunnen hiervoor waarschijnlijk een oplossing bieden.

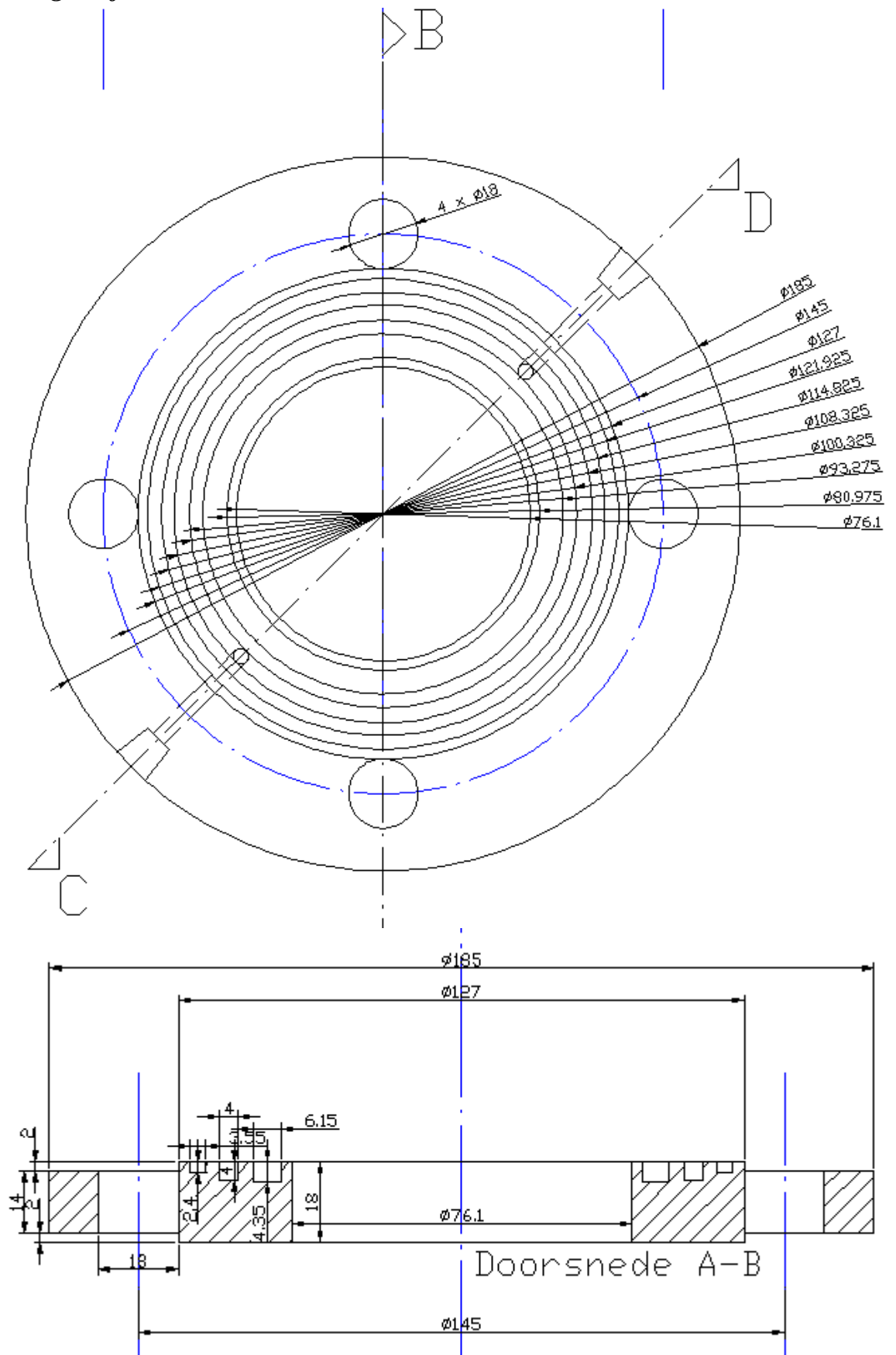
Bijlagen

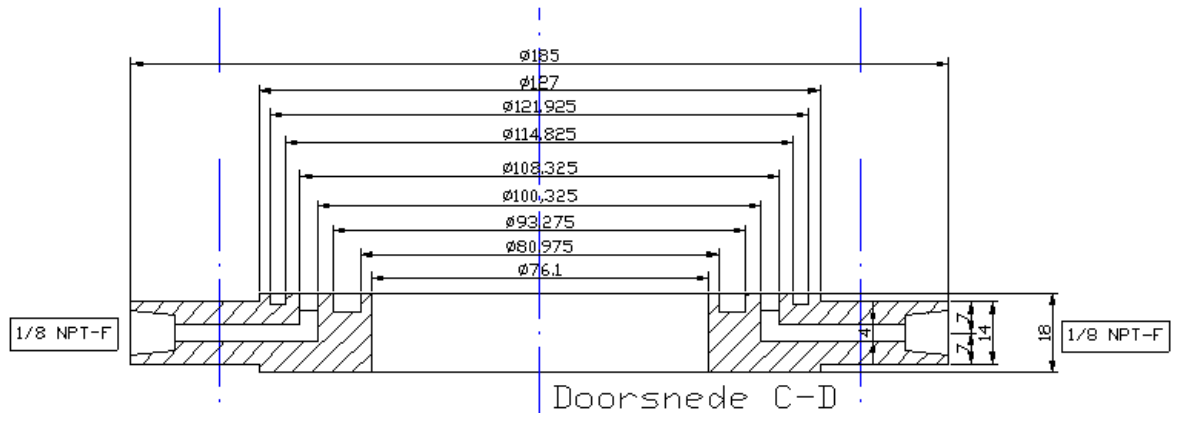
C-ring testflens





O-ring testflens





Literatuurlijst

- 1 Klaar voor de 21ste eeuw, Bedrijfsbrochure SCK•CEN, Mol, 2007.
- 2 E. Anthony Evans, Tritium and its compounds, Butterwoths, London, 1966.
- 3 *Antineutrino*, [webpagina], <<http://www.answers.com/topic/antineutrino>>, [geraadpleegd 8 december 2007].
- 4 Gregory Choppin, Jan – Olov Liljenzin, Jan Rydberg, Radiochemistry and Nuclear Chemistry 3th edition, Butterworth – Heinemann, 2002.
- 5 *DOE Handbook: Primer on tritium safe handling practices*, US department of energy, [Online document], december 1994, <<http://hss.energy.gov/NuclearSafety/techstds/standard/hdbk1079/hdbk1079.pdf>>, [geraadpleegd oktober 2007].
- 6 *Tritium information section*, Idaho State University, [webpagina], <<http://www.physics.isu.edu/radinf/tritium.htm>>, [geraadpleegd op 10 november 2007].
- 7 *Fact sheet on tritium, radiation limits and drinking water standards*, United States Nuclear Regulatory Commission, [webpagina], juli 2006, <<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/fact-sheets/tritium-radiation-fs.html>>, [geraadpleegd op 10 november 2007].
- 8 *Kernfusie*, SCK•CEN, [Webpagina], <<http://www.sckcen.be/fusionweb/NL/dossier.shtml>>, [geraadpleegd op 10 november 2007].
- 9 *ITER*, ITER, [Webpagina], <<http://www.iter.org>>, [geraadpleegd op 24 november 2007].
- 10 *Kernfusie*, [Webpagina], <<http://www.fusie-energie.nl/>>, [geraadpleegd op 24 november 2007].
- 11 P. Vermeiren, Metingen met vloeistofscintillatie, Cursus Radiochemie, I.H.G.L. Mol, 1992.
- 12 Glenn F. Knoll, Radiation detection and measurement, Second edition, 1989.
- 13 Harley Ross, John E. Noakes, Jim D. Spaulding, Liquid scintillation counting and organic scintillation, 1991.
- 14 *Ioniserende straling, waar naartoe met radioactief afval?*, MIRA, Milieurapport Vlaanderen, [Online document], november 2007, <http://www.milieurapport.be/Upload/Main/MiraData/MIRA-T/02_THEMAS/02_06/IONISERENDE_MIRA-T2007.PDF>, [geraadpleegd december 2007].
- 15 K. Dylst, F. Druyts, J. Braet, Assessment of an industrial beryllium recycling route, Final report, SCK•CEN, EFDA, maart 2007.

-
- 16 Aanvraag voor een offerte voor een studie over tritium migratie, Tender number T/JEM083/06, UKAEA, 9 november 2006.
 - 17 Eriks technical handbook precision o-rings, (publicatie 254106), ERIKS, Hoboken, 2002.
 - 18 *IRHD Hardness*, IDES, The Plastic Web, [Webpagina], <http://www.ides.com/property_descriptions/ASTMD1415.asp>, [geraadpleegd 29 november 2007].
 - 19 *Wat is polyurethaanrubber?*, Elastogran BASF – group, [Webpagina], <http://www.pcc-bv.nl/pcc_nl/pcc/informatie/polurethaan.html>, [geraadpleegd op 29 november 2007].
 - 20 *Polyisobutene*, Polymer Science Learning Center, Departement of Polymer Science, [Webpagina], <<http://www.pslc.ws/mactest/pib.htm>>, [geraadpleegd op 29 november 2007].
 - 21 IDES, [Webpagina], <<http://www.ides.com>>, [geraadpleegd op 22 november 2007].
 - 22 *Metal seals*, High Tech Metal Seals, [Webpagina], <<http://www.htms.be>>, [geraadpleegd op 28 februari 2008].
 - 23 Melvin W. Brown, Seals & sealing Handbook, thirth edition, Elsevier, 1990.
 - 24 Ken G. Budinski, Michael R. Budinski, Materiaalkunde voor technici, 3e herziene druk, Prentice Hall, 2002.
 - 25 B.J. Benda, R.T. Langland, Methods for evaluating the leak tightness of spent fuel container closures, Lawrence Livermore Laboratory, februari 1980.
 - 26 W.E. Sheehan, K.M. Muldoon, Differential measurement of low level HTO and HT leak rates, Technical report, Mound lab., Miamisburg, OH (USA), mei 1976.
 - 27 *Tritium production*, United States Nuclear Regulatory Commission, [Online document], <<http://www.nrc.gov/reading-rm/doc-collections/fact-sheets/tritium.pdf>>, [geraadpleegd op 6 mei].
 - 28 *Estimate of tritium permeation out of tpbar waste container*, US department of energy, [Online Document], <<http://sti.srs.gov/fulltext/WSRC-TR-2004-00424.pdf>>, [geraadpleegd op 4 maart 2008].
 - 29 K.F Chaney, G.W. Powell, The diffusitivity of Tritium in 304 Stainless Steel in the temperature range 100° to 300°C, Metallurgic Transactions, 1, 2356-2357, 1970
 - 30 H.G. Nelson, J.E. Stein, Gas-phase Hydrogen permeation through alpha iron, 4130 steel, and 304 stainless steel from less than 100°C to near 600°C, Technical note, NASA, 1973.