

Радиационное повреждение бериллия при высокотемпературном облучении

З. И. ЧЕЧЕТКИНА, В. П. ГОЛЬЦЕВ, В. А. КАЗАКОВ, Г. А. СЕРНЯЕВ, В. Г. БАЗЮКИН

УДК 621.039.532.5

Радиационное повреждение бериллия при высокотемпературном облучении усугубляется тем обстоятельством, что образующиеся в процессе облучения атомы гелия и трития, обладая достаточной диффузионной подвижностью и объединяясь, образуют зародыш газовых пузырьков, а на последней стадии облучения — поры, которые при определенных условиях могут привести к значительному распуханию материала и изменению его механических свойств. При этом характер распухания бериллия во многом будет определяться как структурным состоянием материала, так и условиями облучения.

В данной статье приводятся экспериментальные результаты по изучению физико-механических свойств бериллия (горячепрессованного, полученного из порошка крупностью < 60 и 600 мкм, а также моно- и бикристаллического) после облучения при различных температурах интегральным потоком быстрых нейтронов $6 \cdot 10^{20}$ нейтр/см². Исследуемые образцы имели диаметр 6 мм и высоту 9 мм. Облучение проводилось в реакторе СМ-2 в вертикальном канале в среде гелия технической чистоты. Плотность потока быстрых нейтронов в канале составляла $4 \cdot 10^{14}$ нейтр/см²·сек, тепловых — $2 \cdot 10^{14}$ нейтр/см²·сек. Высокие температуры создавались в результате поглощения γ -квантов облучаемыми образцами. В процессе облучения осуществлялся контроль температуры с помощью хромель-алюмелевых термопар. После облучения изучались плотность, прочность и пластичность при сжатии и микроструктура образцов.

На рис. 1 показано изменение плотности (определявшейся гидростатическим методом) бериллия, находящегося в различном структурном состоянии и облученного дозой быстрых нейтронов $6 \cdot 10^{20}$ нейтр/см², в зависимости от температуры облучения. Исходная плотность образцов составляла $1,830$ – $1,834$ г/см³. Как видно из рисунка, облучение при температурах 100 – 400°C не изменяет плотности образцов. При температурах выше 400°C обнаруживается некоторое изменение плотности, и лишь при температурах выше 800°C наступает значительное ее уменьшение.

Для горячепрессованного бериллия с размером зерна < 600 мкм (кривая 1) при температуре 580°C изменения плотности не обнаружено, однако при температуре 770°C это изменение составляет $0,5\%$, а при температуре 970°C — 3% . Горячепрессованный бериллий с размером зерна < 60 мкм (кривая 2) в тех же условиях облучения при температуре 770°C имеет распухание $0,7\%$ и при 970°C — $1,7\%$. Плотность монокристаллического и литого бериллия (кривая 3) при всех изученных температурах облучения не изменялась.

На рис. 2 приведены микроструктуры облученного горячепрессованного бериллия с размером зерна < 600 мкм.

При температуре 580°C в нем наблюдается повышенная пористость (рис. 2, а). Поры в основном располагаются на границах зерен. По всему объему зерна распределены «выпуклости», которые при вскрытии обнаруживают или выделения, вокруг которых находится некоторая полость, или же отдельные поры. С повышением температуры до 770°C количество подобных дефектов увеличивается. По границам зерен эти «выпуклости» образуют сплошные цепочки. Кроме того, бериллий, облученный при этой температуре, имеет большое число двойников (рис. 2, б). Дальнейшее повышение температуры облучения приводит к появлению пор, которые образуют целые скопления в месте расположения включений, на границах блоков и на различных неоднородностях микроструктуры (рис. 2, в). При температуре облучения 970°C наблюдается большое число пор, расположенных между спеченными частицами порошка.

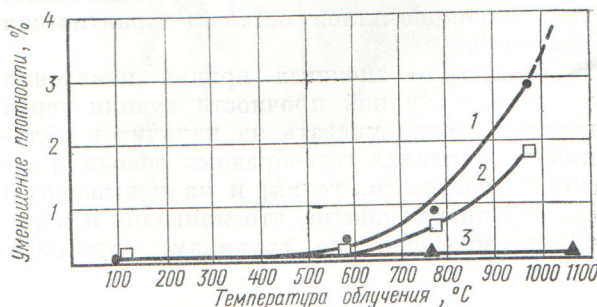
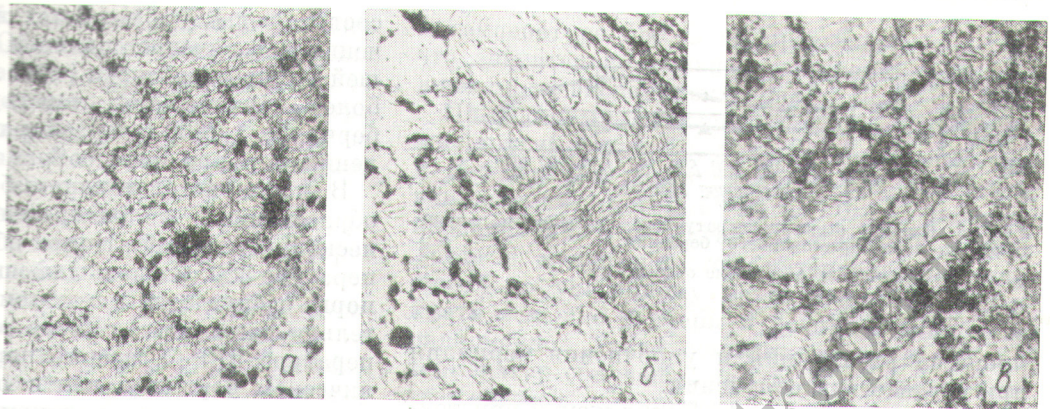


Рис. 1. Изменение плотности бериллия в зависимости от температуры облучения.



Р и с. 2. Микроструктура горячепрессованного бериллия после облучения при различных температурах ($\times 200$):
а — 580° С; б — 770° С; в — 970° С.

В горячепрессованном бериллии с размером зерна < 60 мкм наблюдается тот же характер изменения микроструктуры с повышением температуры облучения, однако поры имеют меньшие размеры, а плотность их больше.

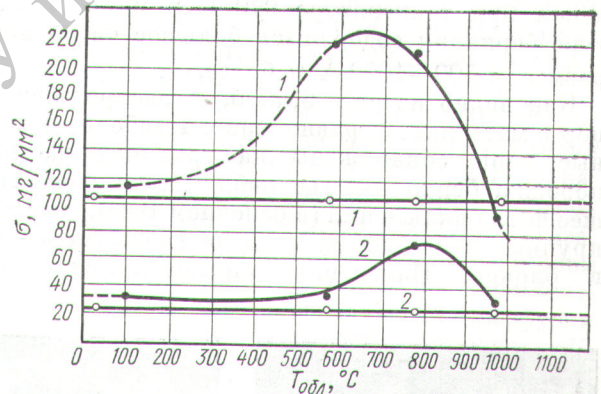
В микроструктуре моно- и бикристаллов литого бериллия, облученного при температуре 580° С, обнаружены мелкие поры размером 100 Å, равномерно распределенные по всему объему зерна. На границах присутствуют более крупные поры. Следует заметить, что отжиг в течение 260 ч необлученного бериллия (соответствует эффективному времени облучения) при указанных температурах не привел к каким-либо изменениям рассмотренных свойств. Микроструктура образцов-свидетелей, отжигавшихся при температуре 580° С, осталась неизменной. После отжига при температурах 770 и 970° С произошло укрупнение зерен, размер которых лежит в пределах 100—300 мкм. В результате электронномикроскопических исследований бериллия после отжига каких-либо изменений в его тонкой микроструктуре не обнаружено.

Вычисленные, по данным механических испытаний, при сжатии предел прочности, предел текучести, относительная осадка, а также измеренная микротвердость представлены на рис. 3—5.

Прочность металла при сжатии (кривые 1, рис. 3) увеличивается по мере приближения к температуре облучения 800° С, а затем начинает спадать. Аналогичный характер носят изменения предела текучести (кривые 2, рис. 3) и микротвердости (см. рис. 5). После отжига контрольных образцов в интервале указанных

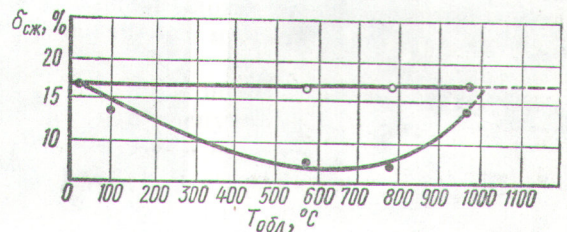
температур их механические свойства не изменились.

Данные об изменениях физико-химических свойств бериллия под действием нейтронного облучения при высоких температурах позволяют установить некоторые закономерности



Р и с. 3. Влияние высокотемпературного облучения на предел прочности (1) и предел текучести (2) при сжатии горячепрессованного бериллия:

● — после облучения; ○ — после отжига.



Р и с. 4. Влияние высокотемпературного облучения на относительную осадку при сжатии горячепрессованного бериллия:

● — после облучения; ○ — после отжига.



Рис. 5. Влияние высокотемпературного облучения на микротвердость горячепрессованного бериллия:

● — после облучения; ▲ — после отжига.

процесса набухания и упрочнения бериллия при воздействии облучения.

Как видно из рис. 3–5, облучение при температурах 580–770° С приводит к значительному упрочнению материала и уменьшению его пластичности. Эффект радиационного упрочнения при температурах выше 800° С отсутствует. Как показало электронномикроскопическое исследование структуры бериллия, после облучения при температурах 580–770° С число пор в материале стало значительным, а их размеры не превышают 100 Å. Изменение плотности при этом составляет менее 0,1%. После облучения при температуре 970° С в микроструктуре бериллия содержится большое число пор размером 500–1000 Å и более.

Как видно из рис. 6, а, б, в, распределение пор в материале неравномерно. Наиболее крупные поры обнаружены на границах частиц порошка бериллия, где наблюдается наибольшее число включений (в основном BeO), а менее крупные поры обнаружены на границах зерен и блоков. Изменения плотности бериллия

составляют 1,7–3%. В тех же условиях облучения в горячепрессованном бериллии с меньшей крупностью зерен (<60 мкм) наблюдаются более мелкие поры, чем в крупнозернистом бериллии (<600 мкм). Характер же распределения пор при этом сохраняется.

В монокристаллическом бериллии характер образования и распределения пористости несколько другой. После облучения при температуре 580° С еще поддающиеся обнаружению поры распределены в объеме металла относительно равномерно. После облучения при температуре 970° С газовые поры в монокристаллическом бериллии почти отсутствуют. Изменения плотности монокристаллов бериллия также не обнаружено. Механические свойства (микротвердость) не отличаются от свойств исходного материала.

Результаты исследований позволяют объяснить характер изменения свойств бериллия в зависимости от состояния накопленного в нем гелия и подтверждают точку зрения о первоочередной роли газовых пор в процессе упрочнения и набухания бериллия под действием нейтронного облучения [1–4].

При низких температурах (<100° С) образующийся в ядерных реакциях гелий находится в кристаллической решетке бериллия. С повышением температуры и ростом диффузионной подвижности гелия, мигрируя в объеме металла, скапливается у дислокаций и у других дефектов-ловушек, образуя поры. Образование пор и их последующий рост приводит к двум процессам радиационного повреждения бериллия: упрочнению материала благодаря закреп-



Рис. 6. Микроструктура горячепрессованного бериллия при различных температурах ($\times 10\,000$):

а — 580° С; б — 770° С; в — 970° С.

лению дислокаций газовыми порами и распуханию бериллия. Оба эти процесса качественно и количественно зависят от размера пор и плотности их распределения. Упрочнение экстремально зависит от размера и числа образующихся газовых пор. Рост пор ведет к заметному распуханию материала.

Мнения о влиянии величины зерна на распределение газовых пор у различных авторов расходятся. Однако большинство из них считает, что главным моментом, связанным с усилением распухания, является миграция отдельных газовых атомов и целых пор к границам зерен и другим источникам вакансий. Поэтому все, что препятствует их перемещению, должно оказаться полезным в отношении снижения распухания.

О влиянии структурного состояния бериллия на процесс распухания под действием облучения можно судить при сравнении количества и размеров гелиевых пор в образцах, имеющих различный размер зерна. Как показывают результаты данной работы, границы зерен и раздела фаз являются не только центрами зарождения пор, но и центрами их осаждения при миграции. По-видимому, наиболее активными центрами осаждения газовых пор являются границы металл — включение и пустоты, возникшие в результате технологической обработки.

При одинаковом количестве накопившегося газа и равномерном распределении последнего образовавшиеся поры, а следовательно, и распухание будут тем меньше, чем больше плотность дефектов, на которых они могут зарождаться и оседать. При этом существенное значение имеет скорость диффузии гелия в бериллии.

Если диффузионная подвижность гелиевых атомов в бериллии настолько мала, что они за время облучения не достигают границ зерен, а остаются внутри, то зарождение пор возможно как на границах зерен, так и внутри них — на дислокациях и других дефектах-ловушках. Поскольку границы зерен в бериллии являются источниками вакансий, рост гелиевых пор вблизи границ будет происходить быстрее, чем внутри зерен. В связи с этим материал, содержащий разветвленную систему границ, имеет больше центров ускоренного роста пор и, следовательно, будет склонен к большему распуханию.

Как показывают расчеты, распухание бериллия, вызванное образованием пор по указанному механизму, при дозе $6 \cdot 10^{20}$ нейтр/см²

и температуре 580° С не превышает ~0,01%, что значительно меньше распухания, обнаруживаемого экспериментально.

По-видимому, основное значение принадлежит другим факторам, а именно появлению пор и полостей на границах зерен под действием напряжений, которые могут быть вызваны неравномерным распуханием отдельных зерен. Тогда в мелкозернистом материале образующиеся по указанному механизму поры будут иметь меньшие размеры и распределены более равномерно. Такая картина характерна для температур облучения до 600° С и хорошо подтверждается как приведенными результатами, так и данными других авторов [5, 6].

С дальнейшим повышением температуры растут диффузионная подвижность гелиевых атомов и пластичность бериллия, поэтому вероятность образования пор по описанным механизмам уменьшается.

Если диффузионная подвижность гелиевых атомов (или газовых пор) достаточна для того, чтобы они достигли границ зерен в процессе облучения, то разветвленность границ и дисперсность включений приведут к меньшему распуханию. Это характерно для температур 800° С и выше, когда материал наиболее склонен к распуханию.

Следует заметить, что при температурах 970° С и выше скорость диффузии атомов гелия обеспечивает выход газа за пределы зерна. В этом случае присутствие различных включений препятствует свободной диффузии газа, в то время как граница, являясь проводником для газа, по-видимому, может служить наикратчайшим путем для последующей диффузии и удаления газа. При этих температурах наиболее эффективными «ловушками» являются включения и поры, возникшие в процессе технологической обработки. В указанной области температур наибольшей радиационной стойкостью будет обладать литой или горячепрессованный металл с мелкодисперсными включениями и большой плотностью их распределения.

Из изложенного можно сделать следующие выводы:

1. Радиационное повреждение бериллия проявляется в его распухании и упрочнении.
2. Достигнутое в процессе облучения распухание бериллия в значительной мере зависит как от его структурного состояния, так и от температуры облучения:

а) литой материал во всем исследованном интервале температур не претерпевает существенного распухания;

б) горячепрессованные материалы из порошка размерами <60 мкм, а также <600 мкм не претерпевают существенного распухания в интервале температур $<600^\circ\text{C}$;

в) распухание горячепрессованных материалов заметно возрастает начиная с температуры 600°C и увеличивается с повышением температуры облучения;

г) материал, горячепрессованный из порошка размером <600 мкм, более склонен к распуханию, чем материал, полученный из порошка размером <60 мкм.

3. Прочностные свойства (σ_b , $\sigma_{0.2}$, δ) бериллия экстремально зависят от температуры облучения; так, наибольшее упрочнение (предел прочности при сжатии равен 200 кг/мм^2) приходится на температуры $600\text{--}800^\circ\text{C}$. На эти же температуры приходится и минимум пластичности (2–3%).

4. Электронномикроскопическое исследование показывает, что особенности изменения

свойств материалов хорошо коррелируют с особенностями поведения накопленного в них гелия. Поведение же гелия в материалах, изготовленных по разным технологиям, в значительной мере предопределяется их структурным состоянием.

Поступила в Редакцию 3/III 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. С. Т. Конобеевский. Действие облучения на материалы. М., Атомиздат, 1967, стр. 278.
2. R. Barns. Metallurgy of Beryllium. London, Chapman and Hall, 1963, p. 372.
3. R. Barns et al. Nucl. Sci., Abstrs, 16, № 2262 (1962).
4. И. И. Папилов, Г. Ф. Тихинский. Физическое металловедение бериллия. М., Атомиздат, 1968, стр. 411.
5. Материалы замедлителя, отражателя и регулирующих устройств. (Обзоры ин-та им. Бэттла). Перев. с англ. Под ред. Д. М. Скорова. М., Атомиздат, 1962.
6. Rich J. B. et al. J. Nucl. Mater. 4, 287 (1961).

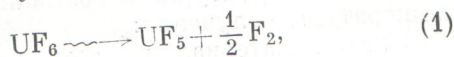
Радиолиз гексафторида урана

В. А. ДМИТРИЕВСКИЙ, А. И. МИГАЧЕВ

Гексафторид урана — единственное соединение урана с относительно большой упругостью пара, что ставит его в разряд перспективных соединений для использования в различных атомных установках.

Впервые о UF_6 как о возможном ядерном горючем упоминается в работе [1]. С тех пор было опубликовано много различных проектов атомных установок на UF_6 . Краткий обзор отечественной и зарубежной литературы по использованию UF_6 в качестве ядерного горючего приведен в работе [2].

Одной из трудностей использования UF_6 является радиационное разрушение его молекул, главным образом под действием кинетической энергии осколков деления. Первые данные о таком радиолизе UF_6 опубликованы в работе [3], посвященной исследованию стендового реактора на газообразном UF_6 . При работе реактора на повышенном уровне мощности в нем наблюдалось уменьшение давления газа и реактивности. В предположении, что диссоциация молекул UF_6 идет по уравнению



определили скорость разрушения UF_6 на единицу мощности. Она оказалась равной

$0,32 \text{ моль/квт} \cdot \text{ч}$, что соответствует радиационно-химическому выходу $G = 0,8 \text{ молекул/100 эв}$. Показано также, что, используя в качестве стабилизирующей примеси сильный окислитель (трифторид хлора), можно обеспечить радиационную устойчивость молекул UF_6 .

Радиационное разрушение гексафторида урана под действием α -частиц изучалось в работе [4]. Получено значение $G \approx 1 \text{ молекул/100 эв}$.

Подробное изучение радиолиза системы гексафторид урана — фтор под действием кинетической энергии осколков деления опубликовано авторами в 1959 г. [5]. В этой работе экспериментально показано, что диссоциация UF_6 происходит по уравнению (1). Скорость разрушения гексафторида урана (без примеси фтора) составляет в начальный момент времени $0,21 \text{ моль/квт} \cdot \text{ч}$ энергии, выделяющейся в газе, и уменьшается по мере накопления в ампулах свободного фтора. С течением времени устанавливается стационарное состояние. Значения концентраций UF_6 и продуктов его радиолиза в стационарном состоянии определяются мощностью дозы, начальным давлением и температурой. Если облучается смесь UF_6 с фтором, концентрация которого в начальный момент выше стационарного значения, то состав смеси не изменяется со временем, т. е. такая смесь