

Изменение прочностных характеристик графита при нейтронном облучении

ПЛАТОНОВ П. А., ВИРГИЛЬЕВ Ю. С., КАРПУХИН В. И.,
ЗАЙЦЕВ А. Л., НОВОБРАТСКАЯ И. Ф.

УДК 621.039.532.21

Воздействие нейтронного поля вызывает изменение свойств графита, что влияет на работоспособность графитовых изделий.

Известно, например [1—3], что облучение нейтронами приводит к значительному (при низких температурах) росту прочностных характеристик графита — пределу прочности при сжатии, модулю упругости.

Величина радиационного упрочнения снижается с повышением температуры облучения и зависит от совершенства кристаллической структуры графита. Исследовалось радиационное поведение двух марок графита — опытного и реакторного (таблица).

Измерения проводили на образцах диаметром 4—6 и длиной 40—45 мм. Образцы графита облучали в герметичных ампулах, заполненных азотом или гелием, в рабочих каналах реактора МР [4] при температуре до 1000° С и в блоке отражателя при температуре около 100° С. В работе все дозы (ϕt) указаны по нейтронам с энергией выше 0,18 Мэв. Температуру контролировали термопарами и алмазными индикаторами [5]. Поток нейтронов в рабочих каналах рассчитывали по мощности твэла, на котором проводили исследования.

Измерение модуля упругости, электросопротивления и изменения длины до и после облучения выполняли на одних и тех же образцах, что позволило исключить ошибки, связанные с колебаниями свойств графита, обусловленными технологией производства. Наряду с этим для ряда образцов определяли пределы прочности при сжатии и растяжении. В этом случае образцы разрушали.

Модуль упругости до и после облучения измеряли динамическим методом на установке РИУ-2, точность измерений которой составляла $\pm 5\%$ [6]. Прочность при сжатии и растяжении $\sigma_{сж}$, $\sigma_{раст}$ определяли на электронной тензометрической установке* для механических испытаний полимеров ЭТУ1МП-1000 с записью на диаграммной ленте. Инструментальная точность установки при $\sigma_{сж} = 400 - 500$ кг/см² составляла 3%. Для исключения влияния масштабного фактора одновременно определяли те же характеристики на необлученных образцах-свидетелях и в качестве результатов принимали относительное изменение измеряемых свойств.

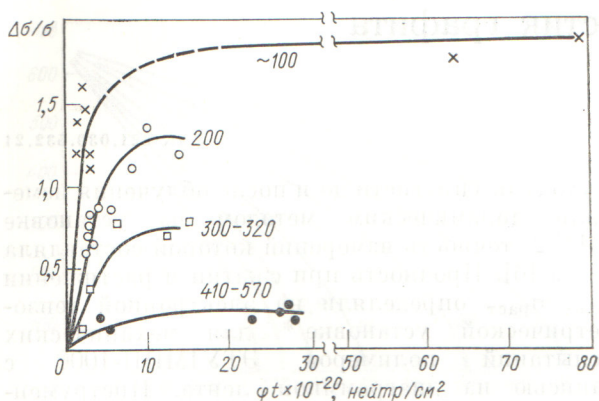
Облучение реакторного графита при 90—150° С вызывает его значительное упрочнение, причем последнее стабилизируется при накопленной дозе около $5-8 \cdot 10^{20}$ нейтр/см² (рис. 1). Длительное облучение образцов до дозы, примерно равной $7 \cdot 10^{21}$ нейтр/см², при этой температуре не изменяло их прочности. Повышение температуры облучения снижало наблюдаемый эффект.

Изменения модуля упругости реакторного графита, измеренные по нескольким образцам одной партии и отдельным образцам из другой, аналогичны изменению прочности (рис. 2). Рост модуля упругости при низкотемпературном облучении (90—150° С) также быстро стабилизируется для накопленной дозы $2,5 \cdot 10^{20}$ нейтр/см². Повышение температуры облучения до 400—500° С снижает этот эффект, а стабилизация

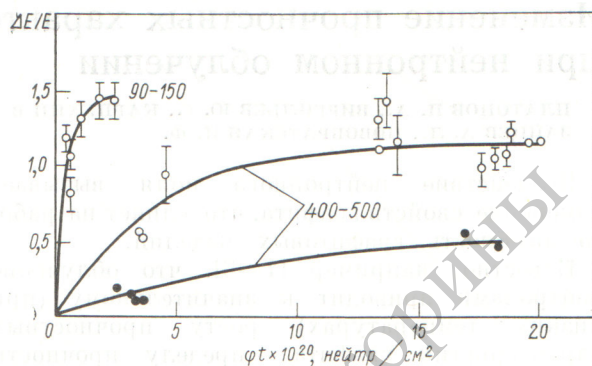
* Разработана Г. П. Ушаковым.

Основные свойства марок графита

Материал	Способ формования	Объемный вес, г/см ³	Направление вырезки относительно оси выдавливания	Предел прочности при сжатии, кг/см ²	Модуль упругости, $\times 10^{-5}$, кг/см ²	Удельное электросопротивление, ом·мм ² /м	Коэффициент термического расширения, $\alpha_{20-100} \times 10^6$, (град С) ⁻¹
Реакторный графит Опытный графит	Продавливание	1,70	⊥	390	0,70	15	3,6
			∥	430	0,98	11	2,8
	Прессование	1,73	⊥	440	0,95	17,5	4,1
			∥	340	0,65	19,5	4,9



Р и с. 1. Зависимость относительного изменения предела прочности при сжатии реакторного графита от интегрального потока. Температуры облучения (°C) указаны у кривых.



Р и с. 2. Зависимость относительного изменения модуля упругости реакторного графита (○) и его полуфабриката (●) от интегрального потока.

наступает при большей нейтронной дозе — $10-15 \cdot 10^{20}$ нейтр/см². При этом относительный рост модуля для материала с невысоким совершенством кристаллической структуры, например полуфабриката реакторного графита, в два раза ниже, чем для реакторного графита.

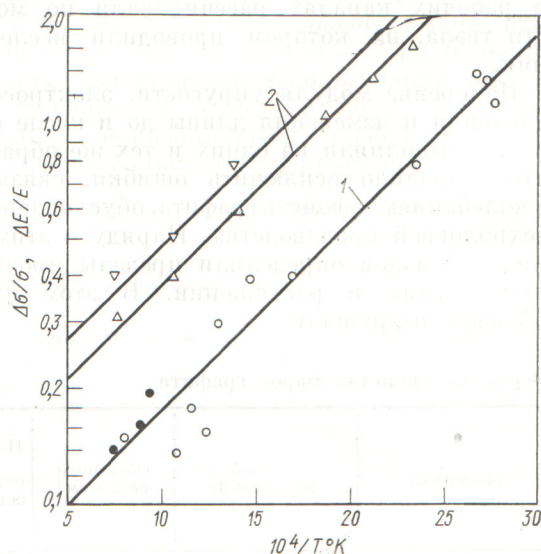
Температурная зависимость соответствующих уровню насыщения величин радиационного упрочнения и увеличения модуля упругости носит экспоненциальный характер (рис. 3). Падение обеих характеристик с ростом температуры облучения практически одинаково, что указывает на один вид дефектов, вызывающих изменение прочности и модуля упругости.

Относительное изменение прочности реакторного и опытного графитовых материалов с учетом колебания свойств из-за естественной технологической неоднородности материала оказались одинаковым.

Сопоставление относительных изменений пределов прочности при сжатии и растяжении в пределах точности измерений также оказалось практически одинаковым. Однако ввиду того что $\sigma_{сж}$ и $\sigma_{раст}$ определяли на образцах, облученных при температуре выше 600° C, когда упрочнение невелико, такой вывод следует рассматривать с известной осторожностью.

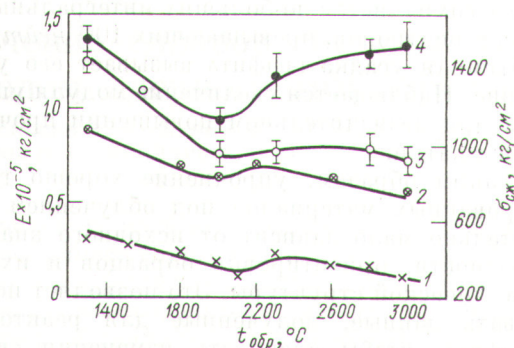
Различие в изменении модуля упругости у графитированного и неграфитированного (полуфабриката) материала, отмеченное выше (см. рис. 2), потребовало оценить влияние совершенства кристаллической структуры углеродных материалов, т. е. степени графитации, на радиационное изменение рассматриваемых свойств. Для этого образцы полуфабриката реакторного графита после обжига подвергались термообработке в интервале 1300—3000° C.

На рис. 4 показано, как влияет температура обработки материала, т. е. в конечном счете совершенство кристаллической структуры, на изменение модуля упругости и прочности при облучении интегральным потоком $3,6 \times 10^{20}$ нейтр/см². Относительное увеличение прочности при сжатии мало зависит от совершенства кристаллической решетки графита во всем исследованном интервале термообработок, т. е. для различных углеродных материалов относительное изменение прочности $\Delta\sigma/\sigma_{сж}$ в пределах $\pm 10-15\%$ может принимать-



Р и с. 3. Зависимость относительного изменения предела прочности при сжатии (1) и модуля упругости графита (2), соответствующих уровню «насыщения» этих характеристик, от температуры облучения:

● — опытный графит; ▽ — для параллельно и △ — перпендикулярно ориентированных образцов при измерении модуля упругости.

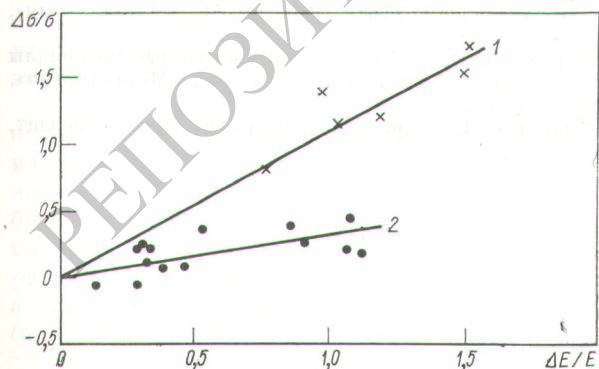


Р и с. 4. Зависимость от температуры обработки образцов полуфабриката реакторного графита: предела прочности при сжатии до (1) и после (2) облучения при 230° С; модуля упругости до (3) и после (4) облучения при 400—500° С.

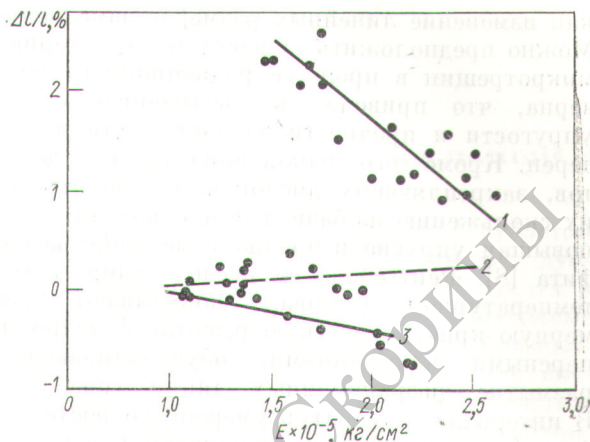
ся одинаковым. Таким образом, оно определяется только условиями облучения — температурой и накопленной дозой, а при высоких дозах, когда процесс стабилизировался, — одной температурой.

Относительное изменение модуля упругости, наоборот, зависит от совершенства кристаллической решетки: чем совершеннее графит, тем значительнее изменение модуля.

Слабое влияние на относительное изменение прочности совершенства кристаллической структуры материала и зависимость от последней величины $\Delta E/E$ являются следствием различной связи указанных характеристик с диаметром кристаллитов L_a . Так, в работе [7] показано, что $\sigma_{сж} \sim L_a^{-1/2}$. В то же время для модуля упругости зависимость от диаметра кристаллитов более сложная. Для графитированных материалов относительные изменения модуля упругости и предела прочности при сжа-



Р и с. 5. Связь относительных изменений предела прочности при сжатии и модуля упругости реакторного графита, облученного при ~100 (1) и 400—900° С (2).



Р и с. 6. Связь относительного изменения длины образцов реакторного графита с их модулем упругости.

Облучение при температурах ниже 150° С (1), при 150—300° С (2) и выше 300° С (3).

тии для данной температуры облучения связаны между собой линейной зависимостью (рис. 5). Это дает возможность восстановить кинетику изменения прочности при облучении по кинетике изменения модуля упругости и позволяет, используя неразрушающие методы контроля, оценивать изменение прочности в процессе облучения. Эффект упрочнения графита с ростом температуры (см. рис. 5) снижается сильнее прироста его упругих характеристик.

Неравномерность скорости изменения линейных размеров элементов конструкции реактора наряду с упругими свойствами и ползучестью определяет уровень внутренних напряжений. Поэтому представляет интерес сопоставить данные по радиационному изменению размеров и модуля упругости в процессе облучения (рис. 6). Зависимость изменения размеров от предела прочности из-за линейной связи между прочностью и модулем упругости примерно аналогична.

На рис. 6 выделены три температурных интервала изменений рассматриваемых свойств графита: умеренный рост графита $\Delta l/l < 1\%$ ($T_{обл} = 150-300^\circ \text{C}$); значительный рост графита ($T_{обл} < 150^\circ \text{C}$); усадка графита ($T_{обл} > 300^\circ \text{C}$).

Каждому интервалу соответствуют характерные изменения в структуре графита и его свойствах. Наиболее интересен интервал умеренного роста графита. Здесь прочностные, упругие характеристики и электросопротивление изменяются с высокой скоростью, тогда

как изменение линейных размеров замедленно. Можно предположить «зарастание» в материале микротрещин в процессе радиационного роста зерна, что приводит к увеличению модуля упругости и прочности за счет заклинивания зерен. Кроме того, накопление простых дефектов, закрепляющих дислокации, препятствует их скольжению по базисным плоскостям, также повышая упругие и прочностные свойства графита [8]. Рентгеновские исследования в этом температурном интервале показывают трехмерную кристаллическую решетку с мелкодисперсными включениями, обуславливающими размытие дифракционных линий типа (00l). В интервале температур умеренного роста графита развивается и заканчивается неустановившаяся стадия радиационной ползучести.

Интервал температур значительного роста графита характеризуется двумерной решеткой: на рентгенограммах присутствуют линии типа (00l). В кристаллической решетке сохраняется только ближний порядок в базисных плоскостях, содержащих значительную концентрацию дефектов — внедренных атомов и вакансий. Концентрация простых дефектов достигает равновесного значения, и их постоянно образующийся избыток создает более сложные дефекты — комплексы.

С увеличением размеров этих комплексов равновесная концентрация простых дефектов снижается. По этой причине модуль упругости и прочность могут даже несколько уменьшаться из-за меньшей концентрации внедренных атомов, способных закреплять дислокации и препятствовать скольжению по базисным плоскостям, и значительного количества вакансий в базисных плоскостях. Все это создает условия для разрушения графита при меньших нагрузках и должно приводить к меньшим значениям модуля упругости. Однако в настоящей работе прочность даже при низкотемпературном облучении дозами до $7 \cdot 10^{21}$ нейтр/см², как уже отмечалось, не снижалась.

Для интервала уменьшения размеров графита (усадки) трехмерная кристаллическая струк-

тура сохраняется до больших интегральных потоков нейтронов, превышающих 10^{21} нейтр/см². Объемная усадка графита вызывает его уплотнение. Наблюдается увеличение модуля упругости при незначительном повышении прочности при сжатии.

Таким образом, упрочнение хорошо графитированных материалов под облучением сравнительно мало зависит от исходного значения прочности, ориентировки образцов и их кристаллической структуры. Это позволяет использовать данные, полученные для реакторного графита, чтобы оценивать изменения свойств графита других марок. Изменение под облучением упругих свойств углеродных материалов в значительной степени определяется совершенством их кристаллической структуры.

Корреляция между упругими свойствами и изменением линейных размеров показывает, что, меняя модуль упругости материала, можно изменять в известных пределах размерную стабильность графита. Физическая сущность такой корреляции пока неясна и требует дополнительных исследований.

Поступила в Редакцию 9/II 1973 г.
В окончательной редакции 27/III 1973 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Вуде В. К. и др. В кн.: Металлургия ядерной энергетики и действие облучения на материалы. М., Metallurgizdat, 1956, с. 593.
2. Kelly В. е.а. J. Nucl. Mat., 1962, v. 7, p. 279.
3. Mantell T. Carbon and Graphite, Handbook. N. Y. LST, 1968.
4. Гончаров В. В. и др. (СССР). III Женевская конференция (1964), доклад № 323.
5. Карпухин В. И., Николаенко В. А. Измерение температуры с помощью облученного алмаза. М., Атомиздат, 1971.
6. Щукин П. С. и др. В кн.: Конструкционные материалы на основе графита, вып. IV. М., «Металлургия», 1969, с. 168.
7. Виргильев Ю. С. В кн.: Конструкционные материалы на основе графита, вып. VII. М., «Металлургия», 1972, с. 52.
8. Вяткин С. Е. и др. Ядерный графит. М., Атомиздат, 1967, с. 208.