

УДК 536.41:620.179.15

О линейном коэффициенте теплового расширения графитовых материалов

ПЛАТОНОВ П. А., ЧУГУНОВ О. К., КАРПУХИН В. И.,
КУЗНЕЦОВ В. Н., АЛЕКСЕЕВ С. И., ГОЛОВИН В. П.

Тепловое расширение графита. Как известно, характерная особенность формованных графитовых материалов — большое различие между расширением кристаллической решетки и макроскопическим тепловым расширением, что обусловлено значительной пористостью этих материалов. Тепловое расширение реакторного графита также анизотропно и существенно зависит от температуры. Анизотропия КТР возникает в результате соответствующей ориентации анизотропных зерен (частиц) исходных сырьевых материалов (кокса), которая появляется в процессе формования заготовок (продавливания или прессования). Степень этой анизотропии зависит от свойств сырья, гранулометрического состава шихты, типа и количества вводимого связующего, числа последующих пропиток, способа формования и т. п. (табл. 1, 2).

На КТР реакторного графита значительно влияет температура графитации, при повышении которой от 1000 до 2000 °С КТР графита несколько увеличивается, а при дальнейшем повышении довольно резко уменьшается (рис. 1). Такой характер зависимости КТР от температуры обработки наблюдается для всех отечественных и иностранных марок реакторного графита. Наблюдаемая закономерность в изменении КТР графита может быть обусловлена либо изменением величины КТР самих кристаллитов в процессе термообработки, либо изменением ориентированной микропористости.

Как следует из табл. 3, КТР пирографита существенно не меняется при увеличении температуры обработки от 2100 до 3200 °С. Следовательно,

наибольшее влияние на КТР реакторного графита оказывает его микропористость, точнее, образующиеся в нем технологические трещины (трещины Мрозовского, располагающиеся между кристаллитами параллельно базисным плоскостям [8]), которые частично компенсируют расширение кристаллитов вдоль гексагональной оси и тем самым уменьшают общий КТР графита (см. рис. 1).

Характер изменения КТР графита в зависимости от температуры обработки (и сопоставление изменений КТР с изменениями других свойств на рис. 1) еще раз подтверждает вывод о том, что образование трехмерной структуры графита в процессе графитации начинается лишь при температуре 2000—2100 °С.

Температурная зависимость КТР графита для блоков реактора РБМ-К представлена на рис. 2, а. Проведенные исследования показали, что КТР всех марок графита быстро увеличивается до температуры ~100 °С, а затем скорость его изменения резко снижается. Такая зависимость КТР от температуры характерна практически для всех отечественных и зарубежных марок реакторного графита.

Расчет тепловых деформаций реакторного графита по однофазной модели. Развитие представлений о связи микро- и макроскопического температурного расширения углеграфитовых материалов [7, 10] привело к созданию полуэмпирической модели теплового расширения поликристаллического графита, в которой разница между значениями теплового расширения решетки и графитового монолита объясняется присутствием порис-

Таблица 1

Структурные параметры и анизотропия теплового расширения реакторного графита различных марок

Марка графита	Совершенство структуры			Размеры кристаллитов		Анизотропия	
	Степень графитации γ	Коэффициент разупорядочения слоев P	Степень графитации J_{112}/J_{110}	$l_c, \text{Å}$	$l_a, \text{Å}$	$(J_{002})_{\perp}/(J_{002})_{\parallel}$	$(\alpha_{\perp}/\alpha_{\parallel})_{400^{\circ}\text{C}}$
ГМЗ (120 парт)	0,81	0,36	0,38	210—230	1000	1,26	1,27
РБМ-КП	0,79	0,39	0,58	190—230	710—730	1,05	1,26
РБМ-К	0,76	0,42	0,63	210—230	570—640	1,23	1,29
ВПГ	0,71	0,48	0,57	190—230	400—730	1,18	1,27
ПГГ	0,69	0,50	0,33	190—210	860—920	0,99	0,94

Примечание: $\gamma = (3,44 - \bar{d}) / (3,44 - 3,354)$; \bar{d} — среднее межслоевое расстояние, связанное с коэффициентом разупорядочения слоев соотношением $\bar{d} = 3,44 - 0,86(I - P) - 0,064(I - P)$; $J_{112}, 110, 002$ — интенсивность соответствующих рентгеновских линий.

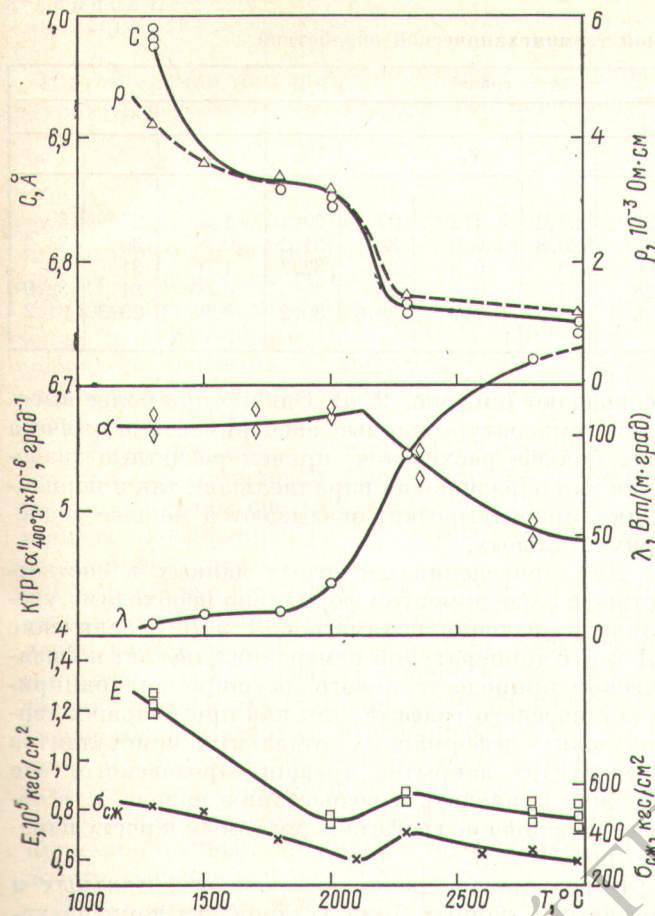


Рис. 1. Влияние температуры обработки на структуру и физические свойства реакторного графита (значки на кривых — экспериментальные точки)

ности особого рода («неустраняемой пористости» по терминологии Мрозовского), возникающей при охлаждении графита от температуры графитации (2300—3000 °С) до комнатной и составляющей ~8 об. %.

В этой модели тепловое расширение по основным направлениям графитового блока (α_{\parallel} и α_{\perp})

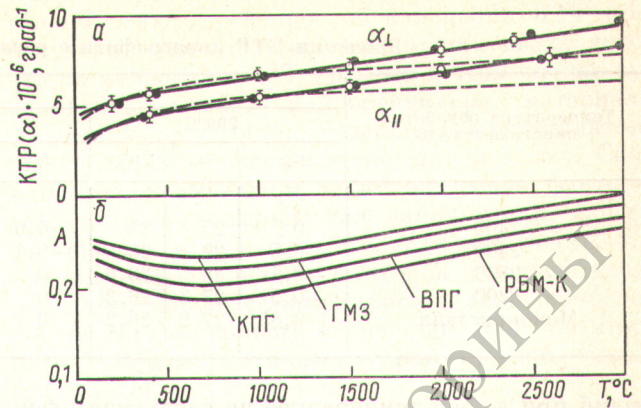


Рис. 2. Зависимость линейных КТР (α_{\parallel} и α_{\perp}) реакторного графита марки РБМ-К (а) и соответствующие изменения текстурного параметра A для различных марок графита (б): — — — расчет КТР при постоянных A и B ; ● — расчет КТР при A и B , зависящих от температуры измерения

связано с коэффициентом теплового расширения его кристаллической решетки (α_a и α_c) текстурными параметрами, отражающими степень предпочтительной ориентации отдельных кристаллитов:

$$\alpha_{\parallel} = A\alpha_c + (1 - A)\alpha_a; \quad (1)$$

$$\alpha_{\perp} = B\alpha_c + (1 - B)\alpha_a, \quad (2)$$

где A и B — безразмерные параметры.

В общем виде эти параметры определяются из уравнений (1), (2). Однако при температуре 400 °С коэффициент α_a равен нулю и выражения существенно упрощаются. В этом случае

$$A = \left(\frac{\alpha_{\parallel}}{\alpha_c}\right) 400^\circ \text{C} \text{ и } B = \left(\frac{\alpha_{\perp}}{\alpha_c}\right) 400^\circ \text{C}. \quad (3, 4)$$

Таким образом, измерив КТР реакторного графита в двух направлениях (α_{\parallel} и α_{\perp}) при 400 °С и зная α_c для монокристалла графита, можно определить параметры A и B для любой марки графита. Тогда, имея значения этих параметров, можно рассчитать тепловую деформацию графитовых из-

Таблица 2

Значения КТР реакторного графита различных марок

Марка графита	$\alpha \cdot 10^{-6}$, град $^{-1}$														
	20°C			200°C			400°C			600°C			800°C		
	α_{\parallel}	α_{\perp}	α_v	α_{\parallel}	α_{\perp}	α_v	α_{\parallel}	α_{\perp}	α_v	α_{\parallel}	α_{\perp}	α_v	α_{\parallel}	α_{\perp}	α_v
ГМЗ	3,9	5,1	14,1	4,6	5,9	16,4	5,1	6,5	18,1	5,3	6,8	18,9	5,9	6,9	19,4
КПГ	6,1	5,7	17,5	6,8	6,4	19,6	7,2	6,9	21	7,6	7,2	22	7,9	7,5	22,9
РБМ-К	2,8	4,4	11,6	3,8	5,2	14,1	4,4	5,7	15,8	4,8	6,0	16,8	5,1	6,1	17,3
РБМ-КП	3,5	4,6	12,7	4,5	5,7	15,9	4,8	6,1	17,3	5,3	6,5	18,3	5,4	6,7	18,8
ВПГ	3,4	5,0	13,6	4,3	5,6	15,5	4,8	6,1	17	5,1	6,3	17,7	5,3	6,4	18,1

Значения КТР пирографита с различной термомеханической обработкой

Температура обработки пирографита, °С	$\alpha \cdot 10^{-6}$, град ⁻¹											
	200°C			400°C			600°C			800°C		
	α_a	α_c	α_v	α_a	α_c	α_v	α_a	α_c	α_v	α_a	α_c	α_v
2100	0	25	25	0,6	25	26,2	1,2	27	29,4	1,5	27	30
2400	-0,5	29	28	-0,1	29	28,8	0,6	30	31,2	0,6	30	31,2
2800	-0,7	28	26,6	0	30	30	0,6	31	32,2	1,0	31	33
3200	-0,5	27,3	26,3	0	28	28	0,5	28	29	0,95	31	32,9
Монокристалл	-0,85	27,9	26,2	0	28,3	28,3	0,7	28,8	30,2	0,95	29,3	31,2

делий при любой температуре по следующим формулам:

$$\left(\frac{1}{l} \frac{\Delta l}{\Delta T}\right)_{\parallel} = A \left(\frac{1}{L_c} \frac{\Delta L_c}{\Delta T}\right) + (1-A) \left(\frac{1}{L_a} \frac{\Delta L_a}{\Delta T}\right); \quad (5)$$

$$\left(\frac{1}{l} \frac{\Delta l}{\Delta T}\right)_{\perp} = B \left(\frac{1}{L_c} \frac{\Delta L_c}{\Delta T}\right) + (1-B) \left(\frac{1}{L_a} \frac{\Delta L_a}{\Delta T}\right), \quad (6)$$

где $\left(\frac{1}{l} \frac{\Delta l}{\Delta T}\right)_{\parallel}$ и $\left(\frac{1}{l} \frac{\Delta l}{\Delta T}\right)_{\perp}$ — тепловая деформация поликристаллического реакторного графита в направлениях, параллельном и перпендикулярном оси формования заготовки (в относительных единицах на интервал температуры ΔT) соответственно; $\left(\frac{1}{L_c} \frac{\Delta L_c}{\Delta T}\right)$ и $\left(\frac{1}{L_a} \frac{\Delta L_a}{\Delta T}\right)$ — тепловая деформация монокристалла графита вдоль гексагональных осей c и a соответственно.

Определение параметров A и B для различных марок реакторного графита было проведено в предположении, что значение КТР монокристалла графита (α_a) равно нулю при 400 °С, а коэффициент $\alpha_c = 28,3 \cdot 10^{-6}$ град⁻¹. Полученные результаты приведены в табл. 4.

На основании найденных параметров на БЭСМ-6 по специальной программе был проведен расчет тепловых деформаций для различных марок реакторного графита. Результаты расчета показали, что до температуры 1000—1500 °С экспериментальные и расчетные значения удовлетворительно

совпадают (см. рис. 2, а). Однако при более высокой температуре данные эксперимента и расчета все больше расходятся, причем расчетные значения для образцов как параллельной, так и перпендикулярной вырезки, оказываются меньше экспериментальных.

Для приведения расчетных данных в соответствие с экспериментом формально необходимо увеличить значения параметров A и B . Увеличение A и B температурой измерения отвечает и физической природе теплового расширения поликристаллического графита, так как при больших термических деформациях отдельных кристаллитов происходит закрытие трещин Мрозовского, что должно приводить к возрастанию вклада α_c в общее расширение графита и тем самым к росту параметров A и B .

В результате сравнения экспериментальных и расчетных данных была установлена температурная зависимость параметров A и B для различных материалов. На рис. 2, б представлено изменение параметра A для графита марок РБМ-К, ГМЗ, ВПГ и КПГ. Аналогичные зависимости получены и для параметра B .

Поскольку зависимость A и B практически идентична для всех исследуемых марок графита (в том числе и для графитов на сыром коксе), то можно

Таблица 5

Значения поправки $\Delta(T)^*$

T , °С	$\Delta(T)$	T , °С	$\Delta(E)$
100	+0,012	900	-0,008
200	+0,005	1000	-0,007
300	+0,001	1100	-0,004
400	-0,003	1200	± 0
500	-0,007	1300	+0,003
600	-0,009	1400	+0,007
700	-0,010	1500	+0,012
800	-0,009		

* При $T > 1500$ °С поправка $\Delta = 0,016$ через каждые 500°С.

Таблица 4

Текстурные параметры A и B для различных марок реакторного графита

Марка графита	A	B
ГМЗ	0,480	0,230
РБМ-К	0,456	0,201
РБМ-КП	0,477	0,220
ВПГ	0,470	0,245
КПГ	0,254	0,244
РГА	0,084	0,160

сделать обобщающее предположение о единой зависимости этих коэффициентов для всех материалов.

В этом случае температурная зависимость параметров A и B будет выражаться соотношениями:

$$A = A_0 + \Delta(T); \quad (7)$$

$$B = B_0 + \Delta(T), \quad (8)$$

где A_0 , B_0 — значения параметров, вычисленные по формулам (3) и (4); $\Delta(T)$ — поправка, зависящая от температуры (табл. 5).

Таким образом, можно рассчитать истинные значения α в интервале 100—3000 °С. Проведенное сравнение расчетов с экспериментом показало удовлетворительное совпадение получаемых значений (рис. 3,а).

Следует отметить, что полученные закономерности являются аналогом температурных поправок для нахождения средних по температурному интервалу коэффициентов теплового расширения реакторного графита [2].

Тот факт, что изменение A и B с ростом степени тепловой деформации графита происходит не скачкообразно, а плавно, указывает на постепенное закрытие технологических трещин в широком интервале температуры. Более того, из расчетов и экспериментов следует, что полное закрытие трещин Мрозовского наступает лишь при 2500—3000 °С, когда объемный коэффициент теплового расширения реакторного графита α_v становится примерно равным объемному коэффициенту теплового расширения монокристалла.

В заключение необходимо подчеркнуть, что проблему расчета тепловых деформаций реакторного графита пытались решить и другими способами, вводя специальные коэффициенты accommodations, учитывающие закрытие трещин Мрозовского в процессе нагревания материала [1, 7]. Однако расчеты по этой модели не дали каких-либо существенных преимуществ по сравнению с термодинамической моделью Симмонса.

Изменение коэффициента теплового расширения графита при реакторном облучении. В результате исследования влияния облучения на КТР отдельных кристаллитов (монокристаллов графита или пирографита) было установлено, что существенные изменения КТР происходят лишь при низкотемпературном облучении ($T_{обл} < 250$ °С); при этом коэффициент α_c уменьшается примерно вдвое, а α_a увеличивается и становится положительным. При флюенсе нейтронов порядка $1-2 \cdot 10^{21}$ нейтр./см² КТР этих материалов почти не изменяется.

При повышенной температуре облучения КТР монокристаллов почти не изменяется, причем совершенство исходной структуры материала (для пирографита), по-существу, не влияет на характер изменения КТР этих материалов как при высокотемпературном, так и при низкотемпературном облучении.

При переходе к поликристаллическому реакторному графиту вопрос об изменении КТР при облучении значительно усложняется ввиду того, что на изменения КТР графита в этом случае существенно влияет макроструктура материала (взаимная ориентация отдельных кристаллитов, общий объем и расположение пор и т. п.). Свое влияние оказывают и технологические факторы (тип исходного сырья, вид наполнителя, способ формования и др.). Поэтому, если еще учесть, что влияние перечисленных факторов зачастую неоднозначно, можно сформулировать лишь наиболее общие закономерности изменения КТР реакторного графита различных марок при облучении (рис. 3—5).

Из экспериментальных данных следует, что при низкотемпературном облучении ($T_{обл} < 250$ °С) КТР большинства марок графита вначале несколько возрастает, а затем уменьшается до исходных значений и даже ниже.

При высокотемпературном облучении изменения КТР различных марок графита существенно отличаются как по абсолютному значению, так и по знаку. Наиболее общий вывод, по-видимому, сводится к тому, что у графитов с низким исходным α наблюдается увеличение КТР, в то время как в случае высокоплотных изотропных материалов с большим α облучение приводит к уменьшению КТР.

Причины этого явления пока до сих пор теоретически не объяснены. Видимо, если при низкотемпературном облучении решающую роль в изменении КТР играют дефекты облучения (неболь-

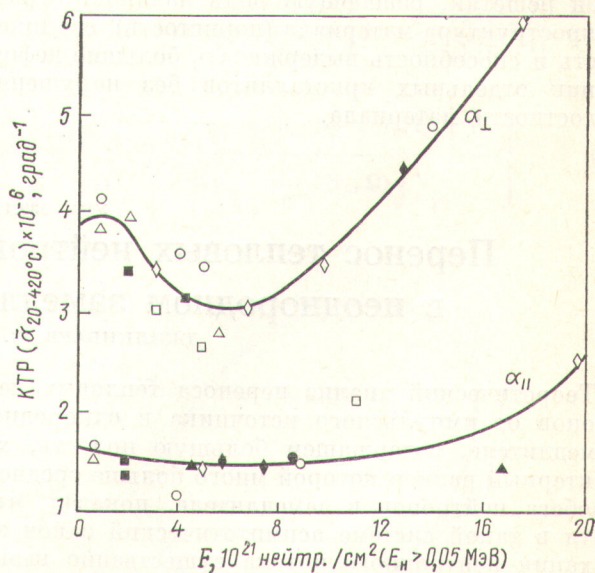
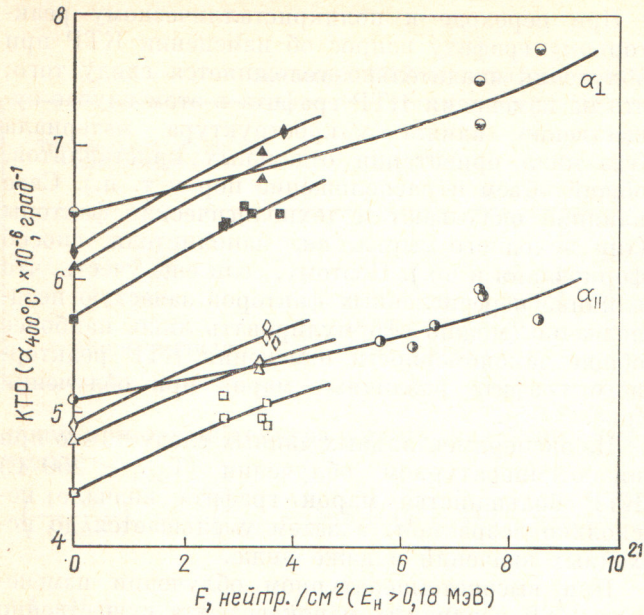


Рис. 3. Влияние облучения на КТР реакторного графита марки CSF [5] при температуре облучения $T_{обл} = 400 \div 450$ (○), $500 \div 550$ (▲), $550 \div 650$ (●), $650 \div 750$ (◆), 800 (◇), 900 (△), $950 \div 1000$ (□), 1200 °С (■)



Р и с. 4. Влияние облучения на КТР реакторного графита отечественных марок: \odot , \ominus — α_{II} и α_I стандартного реакторного графита ГМЗ; \square , \blacksquare — РБМ-К; \diamond , \blacklozenge — РБМ-КП; \triangle , \blacktriangle — ВПГ

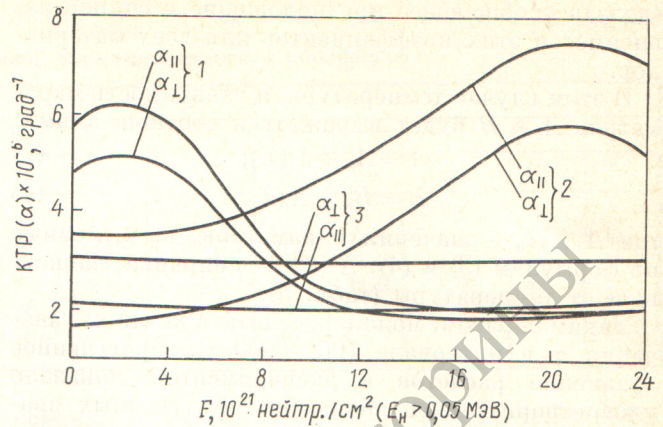
шие комплексы внедренных атомов и вакансий), сильно искажающие кристаллическую решетку графита [9], что и вызывает изменения в характере его теплового расширения, то при высокотемпературном облучении, характеризующемся усиленным формоизменением отдельных кристаллитов без существенного искажения самой кристаллической решетки, решающую роль начинает играть макроструктура материала (пористость), его прочность и способность выдерживать большие деформации отдельных кристаллитов без нарушения целостности материала.

УДК 539.125.52:621.039.51.12

Перенос тепловых нейтронов от импульсного источника в неоднородном замедлителе с большой полостью

ДЖИЛКИБАЕВ Ж. М., КАЗАРНОВСКИЙ М. В.

Теоретический анализ переноса тепловых нейтронов от импульсного источника в однородном замедлителе, содержащем большую полость, характерный размер которой много больше среднего пробега нейтронов в замедлителе, показал, что, хотя в такой системе асимптотический закон затухания нейтронного потока существенно неэкспоненциальный, при определенных условиях (например, при слабом поглощении) наблюдается достаточно большой период времени после нейтронного импульса, когда затухание потока ней-



Р и с. 5. Изменения КТР графита с различной структурой при высокотемпературном облучении [6]: 1 — гилсографит ($T_{обл} = 950-1300^\circ\text{C}$); 2 — прессованный графит на игольчатом коксе ($T_{обл} = 1200^\circ\text{C}$); 3 — графит на игольчатом коксе с пропиткой ($T_{обл} = 950-1200^\circ\text{C}$)

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Виргильев Ю. С., Калягина И. П. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 5, с. 497.
2. Вяткин С. Е. и др. Ядерный графит. М., Атомиздат, 1967.
3. Лутков А. И. и др. «Неорганические материалы», 1972, т. 8, № 8, с. 1409.
4. Платонов П. А. и др. Препринт ИАЭ-2247. М., 1972.
5. Cox J., Helm J. «Carbon», 1969, v. 7, p. 319.
6. Engle G., Eatherly W. «High Temperature — High Pressures», 1972, v. 4, p. 119.
7. Mason J., Knibbs R. «J. Nucl. Energy», 1964, Parts A/B, v. 18, p. 311.
8. Mrosowski S. In: Proc. of the First and Second Conference on Carbon. Oxford, Pergamon Press, 1956, p. 31.
9. Platonov P. A. e. a. «Rad. Effects», 1975, v. 25, p. 105.
10. Simmons J. Radiation Damage in Graphite. Oxford. Perg. Press, 1965.

Поступила в Редакцию 23.10.78
В окончательной редакции 09.04.79

тронов в замедлителе и на его границе с полостью близко к экспоненциальному. Измеряя соответствующую эффективную постоянную затухания, можно определить альбеда нейтронов на этой границе, усредненное по углам влета и вылета. Однако для практики особый интерес представляют неоднородные, в частности слоистые, системы (канал реактора, скважина для геофизических измерений и др.). Теоретическому анализу нестационарного переноса нейтронов в таких системах посвящена настоящая работа.