

Изменение теплопроводности графита при облучении

Ю. С. ВИРГИЛЬЕВ, Н. С. БУРДАКОВ, В. Г. МАРТЯНОВ, Ю. С. ЧУРИЛОВ

УДК 621.039.531:536.21:661.666

Теплопроводность наряду с прочностью является важнейшим свойством конструкционного графита. Известны многочисленные данные по изменению теплопроводности различных марок графитов под действием облучения. В настоящей работе сделана попытка путем обобщения имеющихся данных, как опубликованных, так и полученных авторами, найти единую зависимость изменения теплопроводности от дозы и температуры облучения.

В результате облучения теплопроводность резко падает [1, 2]. При этом максимальная скорость падения λ обнаруживается в начальный период облучения и снижается с ростом температуры облучения.

Абсолютная величина изменения теплопроводности и скорости ее изменения связана со степенью совершенства кристаллической решетки необлученного графита: она тем выше, чем выше степень графитизации [3]. И наоборот, для плохо графитизирующихся материалов абсолютное изменение теплопроводности невелико [4].

Измерение теплопроводности осуществляли на образцах диаметром 8 и высотой 10 мм сравнительным методом с использованием эталона в интервале температур 20–120°С; точность измерения составляла $\pm 5\%$.

На основании полученных результатов на рис. 1 приведены данные по теплопроводности до и после облучения некоторых отечественных марок графита, облученных при температуре 100, 270 и 600°С различными интегральными потоками. Эти зависимости выражаются прямыми линиями, имеющими различный угол наклона. Таким образом, для данных условий облучения относительное изменение теплопроводности $\Delta\lambda/\lambda$ постоянно и не зависит от вида материала.

В связи с этим при оценке изменения теплопроводности в зависимости от дозы и температуры облучения могут быть использованы результаты, полученные при измерениях на различных графитовых материалах.

Однако если для некоторых зарубежных и отечественных марок графита исследовать зависимость изменения термического сопротивления k от температуры облучения, то экспериментальные точки расположатся между двумя кривыми, спадающими в сторону высоких температур. Одна из них соответствует облучению в высокопоточном материаловедческом реакторе, вторая (с более плавным спадом) — в уран-графитовом реакторе (рис. 2). Выше $\sim 400^\circ\text{C}$ теплопроводность во всех рассмотренных случаях падает не более чем в 1,8–2 раза по сравнению с исходной.

Многочисленные экспериментальные данные по зависимости $\Delta k/k$ от дозы облучения удовлетворительно аппроксимируются уравнением

$$y = \frac{ax}{1 + \gamma x}, \quad (1)$$

где $y = \Delta k/k$; x — доза, за единицу которой взята величина 10^{20} нейтр/см²; $\gamma = a\alpha$ — постоянные, учитывающие влияние температуры и «жесткости» повреждающего потока.

Уравнение (1) аналогично выражению для количества накопленных радиационных дефектов, получаемому в соответствии с теорией радиационных нарушений, предложенной в работе [5].

Из вида уравнения (1) следует, что увеличение $\Delta k/k$ пропорционально накопленной дозе.

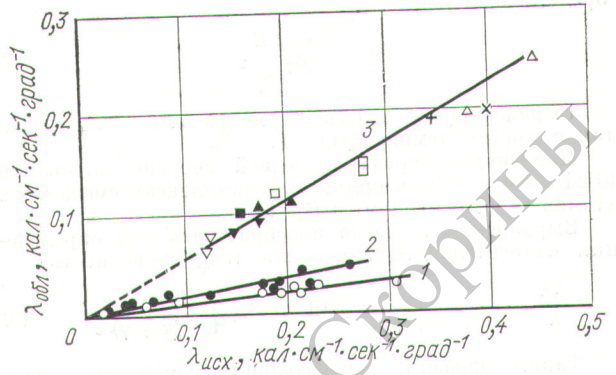


Рис. 1. Зависимость теплопроводности различных марок графита до и после облучения от температуры: 1 (○) — 100°С, интегральный поток 10^{20} нейтр/см², опытные марки изотропного графита; 2 (●) — 270°С, $5 \cdot 10^{20}$ нейтр/см², опытные марки изотропного графита; 3 — 600°С, $5 \cdot 10^{20}$ нейтр/см², опытные марки графита: □ — изотропный, ×, △, ▲ — анизотропный (параллельно и перпендикулярно оси формирования соответственно).

Постоянные в уравнении (1) можно найти графическим построением экспериментальных точек в координатах $\frac{1}{y}; \frac{1}{x}$.

Результаты обработки многочисленных данных по изменению термического сопротивления в различных

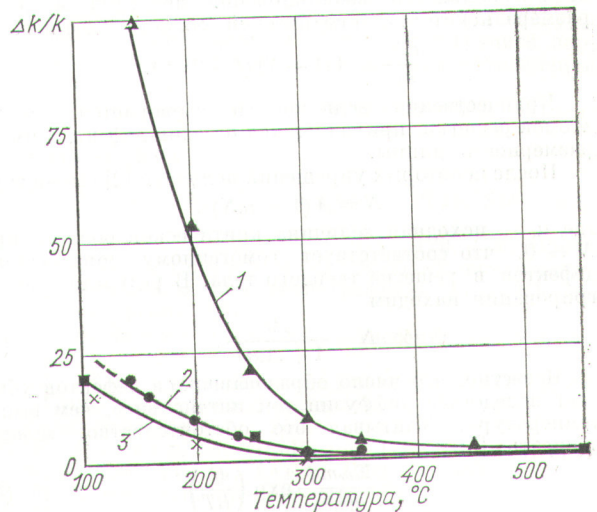


Рис. 2. Зависимость относительного изменения термического сопротивления графита от температуры облучения:

▲ — реактор МТР, графит РГА [7]; уран-графитовый реактор: ● — графит КС [1], × — ГМЗ; ■ — опытные марки графита. Интегральный поток $5 \cdot 10^{20}$ нейтр/см²; измерение по нейтронам с энергией $E > 0,18$ Мэв (1) и по тепловым (2, 3).

условиях дали возможность получить зависимость постоянных в уравнении (1) от температуры облучения и жесткости повреждающего потока.

Легко убедиться, что постоянная a экспоненциально убывает с температурой облучения и может быть представлена как

$$a = \frac{a_0 \exp E}{RT}. \quad (2)$$

Выражение (2) описывает уменьшение числа дефектов с ростом температуры T .

Найденные значения средней энергии активации (0,24 эВ) могут быть приписаны комплексам смещенных атомов C_2 (в основном) и C_4 [6].

Выражение (1) легко преобразовать для определения относительного изменения теплопроводности:

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{ax}{1+(a+\gamma)x} \quad \text{или} \quad \lambda = \lambda_0 \frac{1+\gamma x}{1+(a+\gamma)x}. \quad (3)$$

Таким образом, относительное изменение теплопроводности искусственного графита при облучении в первом приближении не зависит от вида материала, а определяется дозой и температурой облучения.

С ростом температуры облучения эффект уменьшения теплопроводности снижается экспоненциально.

К теории радиационных нарушений

Ю. С. ВИРГИЛЬЕВ

Из предложенных к настоящему времени теорий радиационных повреждений графита заслуживает внимания в силу своей простоты теория Баларина и Хансера [1]. Согласно этой теории изменение концентрации дефектов Френкеля во времени зависит только от интенсивности возникновения дефектов A и от размера некоторой «критической области» дефекта α :

$$\frac{dN}{dt} = A(1-N)(1-2\alpha N). \quad (1)$$

Количественно величина α выражается числом атомов решетки, приходящихся на один дефект, и имеет размерность длины.

После некоторых упрощений получаем [2] выражение
$$N = A(1-\alpha_0 N)^2, \quad (2)$$
 где α_0 — исходная величина критической области при $N=0$, что соответствует гомогенному образованию дефектов в решетке твердого тела. В результате интегрирования находим

$$N = \frac{At}{1+A\alpha_0 t}. \quad (3)$$

Известно, что число образовавшихся дефектов убывает вследствие диффузии тем интенсивнее, чем выше температура. Учитывая это обстоятельство, можно записать [3]

$$A = \frac{\Sigma_{t_1} m \varphi}{n \rho_0 \nu_0} \exp\left(\frac{Q}{RT}\right), \quad (4)$$

где Σ_{t_1} — макроскопическое сечение рассеяния; m — число смещенных атомов на один нейтрон (~ 200) [4]; φ — повреждающий поток, $\text{нейтр/см}^2 \cdot \text{сек}$; n — минимальное число атомов в комплексе, равное 2; ρ_0 — атомная доля стоков ($\sim 10^{-5}$); ν_0 — частота колебаний решетки ($\sim 10^{13} \text{ сек}^{-1}$); Q — суммарная энергия активации; T — температура облучения, $^\circ\text{K}$.

Предложенное эмпирическое выражение удовлетворительно описывает изменение теплопроводности в зависимости от дозы и температуры облучения и с учетом жесткости повреждающего потока.

Поступило в Редакцию 20/II 1970 г.
В окончательной редакции 4/V 1970 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. И. Вудс и др. *Металлургия ядерной энергии* и действие облучения на материалы. М., Metallurgizdat, 1956.
2. В. И. Клименков, Ю. Н. Алексеев. В сб. «Сессия АН СССР по мирному использованию атомной энергии», М., Изд-во АН СССР, 1955, стр. 322.
3. В. Meyer, D. Schweiter. In «Proc. 5 Conf. Carbon (Pennsylvania, 1961)». Vol. 1, N.Y.—L., Perg. Press, 1962, p. 328.
4. C. Rasorn, J. M. C. Cleland. *Phys. Chem. Sol.* 15, 17 (1960).
5. M. Balarin, O. Hanser. *Phys. Stat. Sol.*, 10, 475 (1965).
6. T. Iwata, M. Suzuki. In «Radiation Damage in Reactor Materials». Vienna, IAEA, 1963, p. 565.
7. J. Simmons. In «Proc. Uranium and Graphite Symp.». London, 1962.

УДК 621.039.531:536.21:661.566

Если время облучения выразить через отношение дозы к потоку $t = \frac{\psi}{\varphi}$ и за единицу дозы выбрать $\psi = 1 \cdot 10^{20} \text{ нейтр/см}^2$, то найдем

$$N = \frac{A'x}{1+\gamma x}, \quad (5)$$

где $x = \frac{\psi}{10^{20}}$; $\gamma = \frac{A\alpha_0}{\varphi} 10^{20}$; $A' = \frac{A}{\varphi} 10^{20}$.

Поскольку N отнесено к одному атому, второй член в знаменателе и числитель должны быть разделены на число атомов в 1 см^3 .

Накопление дефектов изменяет физические характеристики материала, в том числе параметры кристаллической решетки. Если изменение свойств материала пропорционально изменению числа дефектов, то, введя коэффициент пропорциональности k , в конечном счете получим выражение вида

$$y = \frac{ax}{1+\delta x}, \quad (6)$$

где $y = \frac{\Delta C}{C}$ — относительное изменение параметра C ;

$$a = kA'; \quad \delta = k\gamma = \frac{kA\alpha_0}{\varphi} 10^{20}.$$

Рассмотрим теперь зависимость изменений параметров решетки алмаза и графита от дозы и температуры облучения. В первом случае используем результаты В. А. Николаенко [4], а во втором — опубликованные данные [5–7] и результаты экспериментов [8]. Построение исследуемых зависимостей в координатах $\frac{1}{x}, \frac{1}{y}$ позволяет для каждой температуры облучения определить параметры a и δ , входящие в уравнение (6).