

УДК 539.12.043

ИЗМЕНЕНИЕ СВОЙСТВ ГРАФИТА И АЛМАЗА ПРИ ОБЛУЧЕНИИ В РЕАКТОРЕ, ТЕРМИЧЕСКОМ И РАДИАЦИОННОМ γ -ОТЖИГЕ

Николаенко В.А., Карпухин В.И. (РНЦ «Курчатовский ин-т»)

γ -Излучение, сопровождающее в реакторе нейтронное облучение материалов, вызывает в них радиационный γ -отжиг дефектов [1, 2]. Этот процесс реализуется благодаря конверсии γ -квантов в быстрые электроны, которые, взаимодействуя с дефектными атомами, изменяют их энергетическое состояние в кристаллической решетке.

В результате нейтронного облучения созданные изначально в пике смещения дефекты, имеющие узкий сплошной спектр энергии активации отжига, преобразуются. Это преобразование под действием γ -квантов приводит к постепенному размытию спектра дефектов в области меньшей и большей энергии активации [3, 4]. Дефекты с малой энергией активации отжига удаляются при температуре облучения — это и есть радиационный γ -отжиг [3, 4]. Интересны и не менее важны дефекты, энергия активации которых под влиянием γ -излучения увеличивается. Эти более устойчивые дефекты термическому отжигу не подвергаются и по мере облучения накапливаются в материале.

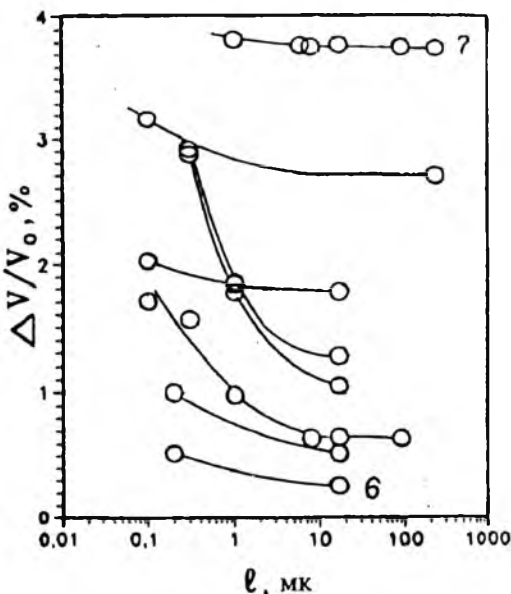
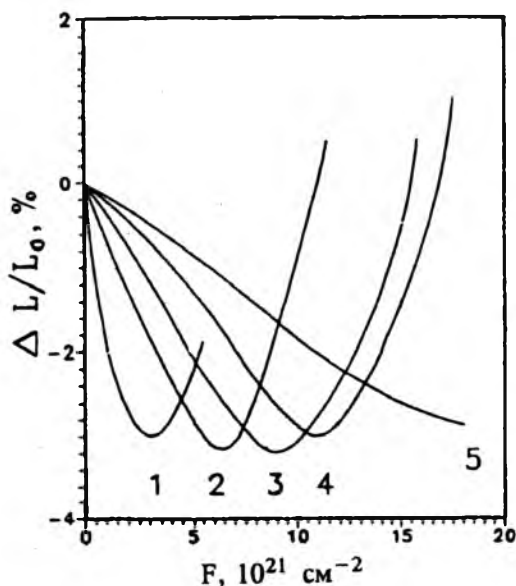
Таким образом, спектр дефектов в облучаемом материале определяется свойствами материала, типом связей и структурой, температурой и длительностью облучения, интенсивностью и спектром нейтронов и γ -квантов, исходным спектром дефектов в пике смещения.

Спектр дефектов зависит от элементного состава материала, но и в однокомпонентных кристаллах, например, алмазе и графите дефекты в момент образования разные и по-разному изменяются в процессе дальнейшего облучения. Кристаллическая решетка алмаза при облучении изотропно расширяется, графита (при температуре облучения менее 300 °С) изменяется анизотропно: параметр C увеличивается, параметр a уменьшается. Это обусловлено различиями типа связей и кристаллического строения.

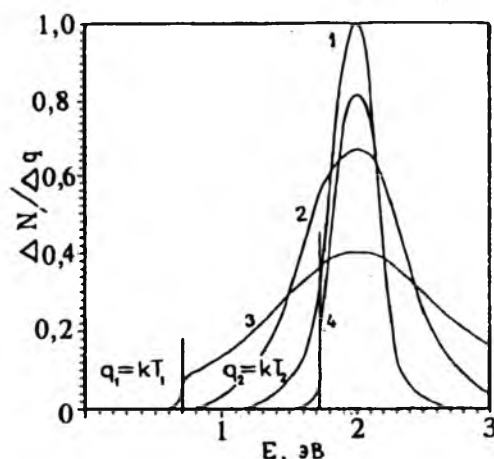
На абсолютные значения и скорость изменения параметров кристаллической решетки влияет совершенство кристаллической структуры (рис. 1).

Графит с разной предварительной термообработкой (чем выше температура обработки, тем графит совершеннее) облучали в МР при температуре около 550 °С, алмаз разной зернистости — при 60—100 °С в МР, ИРТ-М и ИР-8.

Качественная схема трансформации спектра дефектов в пике смещения под влиянием γ -излучения приведена на рис. 2. Если при облучении алмаза и графита плотность потока γ -квантов превышает $10^{13} \text{ с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$, то передний фронт спектра дефектов определяется температурой облучения ($T_1, q_1 = kT_1$) [3, 4]. Это объясняется изменением спектра дефектов от состояния 1 к состояниям 2 и 3 под действием потока γ -квантов и отжигом дефектов с малой энергией активации при температуре облучения. В случае облучения при более высокой температуре передний фронт спектра дефектов представлен кривой 4 ($T_2, q_2 = kT_2$). На этих эффектах основана работа измерителя температуры облучения с рабочим датчиком из алмаза [5,6]. Измеритель действует следующим образом. Алмаз после облучения подвергается изохрональному отжигу. Когда температура отжига начинает превышать температуру облучения, расширение



Р и с. 1. Зависимость размерных изменений образцов поликристаллического графита от флюенса нейтронов ($E > 0,18$ МэВ) при температуре облучения 500—600 °С, предварительной обработки 1300 (1), 1500 (2), 1800 (3), 2000 (4) и 2300 °С (5) и порошка алмаза от размера зерна при возрастании флюенса нейтронов от $4 \cdot 10^{18}$ (6) до $1,7 \cdot 10^{20}$ см $^{-2}$ (7)



Р и с. 2. Спектр дефектов, возникающих в пике смещения при его создании (1) и трансформации под влиянием γ -излучения и температуры облучения (2, 3), 4 — спектр дефектов, возникающий при более высокой температуре облучения

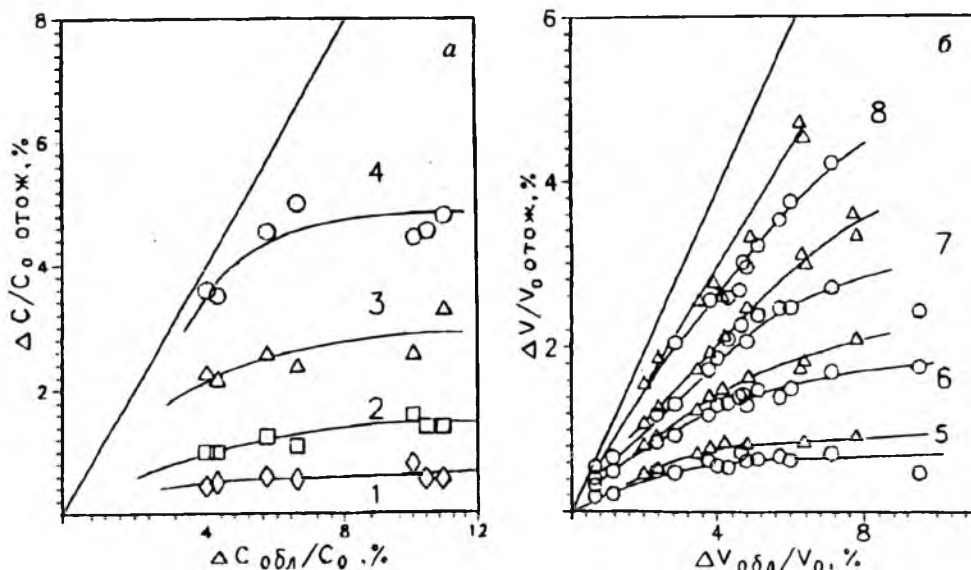
кристаллической решетки, вызванное облучением, начинает уменьшаться. Точка излома на кривой зависимости расширения решетки алмаза от температуры отжига и определяет температуру облучения.

Эффективность преобразования спектра дефектов под действием γ -излучения зависит как от плотности потока, так и от флюенса γ -квантов при облучении в реакторе. Кроме этих параметров важную роль играет фактор состава излучения φ_n/φ_γ — отношение потоков нейтронов и гамма-квантов. В процессе нейтронного облучения в объеме кристалла создаются пики смещения, при этом постепенно увеличивается вероятность образования пика смещения на месте уже созданного. При больших значениях φ_n/φ_γ среднее время жизни между повторными образованиями перекрывающихся пиков смещения мало и соответственно флюенс γ -квантов, преобразующий дефекты в пике смещения, мал.

Во многих случаях условия облучения в реакторе таковы, что дефекты с большой энергией активации накапливаются в материале, и избыток устойчивых дефектов влияет на изменение свойств облучаемого материала.

Приведенные соображения подтверждаются экспериментами. На рис. 3 приведены данные о доле отжигаемых дефектов (отжигаемой составляющей расширения кристаллической решетки) в графите и алмазе после облучения в реакторе и отжига при каждой температуре 3 ч в диапазоне до 900 °С.

Поликристаллический графит облучали в бериллиевой ячейке (10-05) МР при 80—130 °С. Зависимости 1—4 на рис. 3, а характеризуют отжигаемую при соответ-



Р и с. 3. Зависимость отжигаемой составляющей расширения кристаллических решеток углеродных материалов от расширения после облучения нейтронами: отжиг поликристаллического графита при 200 (1), 300 (2), 550 (3) и 900 °C (4), отжиг алмаза, облученного в рабочих каналах (○) и бериллиевых блоках (Δ) МР, при 300 (5), 420 (6), 550 (7) и 700 °C (8)

вующей температуре составляющую исходного расширения кристаллической решетки графита после облучения (по оси ординат отложена разность между расширением решетки после облучения и расширением, измеренным после отжига). Отжигаемая составляющая расширения кристаллической решетки увеличивается по мере роста температуры отжига, что естественно при сплошном спектре дефектов. Однако более важно то, что с увеличением исходного расширения (после облучения) повышается неотжигаемая составляющая расширения, определяемая более устойчивыми дефектами. Если появление этих дефектов связано с воздействием γ -излучения, то в случае облучения графита при большей интенсивности γ -излучения, например, в рабочем канале МР последующий отжиг должен показать еще большее увеличение неотжигаемой составляющей расширения. Такие эксперименты проведены с алмазом, облученным при температуре 60—100 °C (см. рис. 3, б). Видно, что доля неотжигаемых дефектов для алмаза так же, как и для графита, увеличивается при повышении исходной концентрации дефектов (расширения кристаллической решетки облученного алмаза). Однако в этом случае алмаз был облучен в разных каналах (рабочих и бериллиевых ячейках) МР, где плотность потока γ -излучения различалась в несколько раз. Это позволило проследить за характером отжига алмаза, облученного при разных уровнях γ -излучения. Доля неотжигаемого расширения кристаллической решетки облученного алмаза увеличивается с ростом потока γ -излучения (в рабочем канале МР плотность потока γ -излучения примерно в 4 раза выше, чем в бериллиевой ячейке), а не только с повышением концентрации дефектов (первоначального расширения). Это показывает, что накопление более устойчивых дефектов стимулируется облучением γ -квантами.

Во время облучения графита при температуре выше 300 °C точечные дефекты не сохраняются, и изменение параметров его кристаллической решетки становится незначительным. Известно, что облучение при 500—800 °C сначала вызывает усадку, а затем распухание реакторного графита (см. рис. 1). При этом после того, как распухание компенсирует предварительную усадку (момент пересечения кривыми рис. 1 оси абсцисс), последующий рост объема графита происходит лавинообразно. Изменение конструктивных свойств графита при облучении коррелирует с его объемными изменениями: предел прочности и коэффициент теплопроводности лавинообразно

уменьшаются при увеличении объема. В связи с этим за критерий работоспособности реакторного графита принимается так называемый критический флюенс нейтронов ($E > 0,18$ МэВ) — флюенс, при котором зависимость объемного изменения графита пересекает ось абсцисс.

Проследим за ходом изменения этих зависимостей для графита марки ГР-280, предназначенного для РБМК, при различных условиях облучения. Принимается, что основным критерием, определяющим работоспособность графита, является критический флюенс нейтронов. Результаты приведены в таблице и на рис. 4, откуда следует, что увеличение потока γ -излучения более чем в 10 раз приводит к уменьшению критического флюенса нейтронов для графита марки ГР-280 в 2 раза. Этот результат характерен для диапазона температуры облучения 500—800 °С. В РБМК поток γ -излучения меньше, чем в СМ-2 и МР, и поэтому можно ожидать некоторого увеличения критического флюенса нейтронов на графит, эксплуатируемый в этом реакторе.

Условия облучения графита марки ГР-280

Реактор	Характеристики			
	МР		СМ-2	
Плотность потока γ -квантов, $\text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$	$3 \cdot 10^{14}$		10^{16}	
Температура облучения, °С	500—600	720—800	540—600	720—800
Критический флюенс нейтронов, 10^{21} см^{-2}	21	13	9,5	6,5

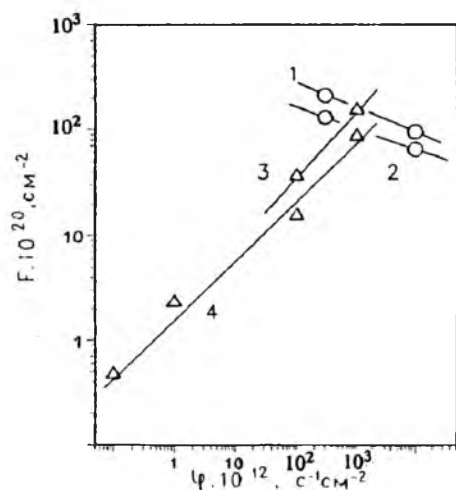


Рис. 4. Условия облучения углеродных материалов для достижения критического флюенса нейтронов ($E > 0,18$ МэВ): графикт ГР-280 (O), температура облучения 500—600 (1) и 700—800 °С (2), алмаз (Δ), начало аморфизации, 530 (3) и 270 °С (4)

нов, но и в не меньшей степени от плотности потока γ -излучения. Если задачей является сохранение кристаллического состояния алмаза при выдержке в реакторе, то облучать следует при более высокой температуре и плотности потока γ -излучения.

В заключение отметим, что приведенные данные об изменении свойств углеродных материалов при реакторном облучении свидетельствуют о значительном влиянии γ -излучения. Поэтому при радиационных испытаниях этих материалов оценка потоков γ -квантов так же необходима, как и традиционный учет флюенса нейтронов и температуры облучения.

Авторы приносят искреннюю благодарность рецензенту за неоценимый вклад в окончательную доработку статьи.

В данном случае уменьшение плотности потока γ -излучения дает для практики (в конкретных условиях РБМК) положительный эффект. Во всяком случае необходимо еще раз обратить внимание на то, что рациональное сочетание не только флюенса нейтронов и температуры облучения, но и плотности потока γ -излучения в некоторых случаях дает возможность сделать реакторные конструкции более стойкими и безопасными в эксплуатации.

Критический флюенс нейтронов для алмаза на рис. 4 относится к моменту начала аморфизации его кристаллической структуры при облучении. За меру такого начала принято состояние, при котором на рентгенограмме, полученной с порошка облученного алмаза, исчезает рефлекс (133), регистрируемый на $K\beta$ -излучении трубки с кобальтовым анодом.

Из анализа рис. 4 следует, что процесс аморфизации, т.е. перестройки структуры материала при реакторном облучении, зависит не только от температуры облучения и флюенса нейтронов,

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nikolaenko V.A., Gordeev V.G., Karpukhin V.I. Effect of γ -irradiation on defect annealing in diamond. — Rad. Ef., 1996, v. 139, № 3, p. 173—182.
2. Николаенко В.А., Карпукhin В.И., Гордеев В.Г. Влияние γ -излучения на кристаллические материалы при облучении в реакторе. — Атомная энергия, 1994, т. 77, вып. 3, с. 186—189.
3. Николаенко В.А., Карпукhin В.И. Влияние γ -излучения на спектр дефектов в облучаемом материале. — Там же, 1996, т. 80, вып. 2, с. 92—97.
4. Nikolaenko V.A., Karpukhin V.I. Radiation annealing of defects under the effect of γ -radiation. — Доклад на 7-й Межд. конф. по материалам для термоядерного реактора. Обнинск, сентябрь 1995 г.
5. Pravdyuk N.F., Nikolaenko V.A., Karpukhin V.I., Kuznetsov V.N. Investigation of diamond and silicon carbide as indicators of irradiation conditions. — In: Proc. Intern. Conf. held at Barkalay Castle, Gloucestershire, England from 30th May to 2nd June, 1961.
6. Николаенко В.А., Карпукhin В.И. Измерение температуры с помощью облученных материалов. М.: Энергоатомиздат, 1986. 122 с.

Поступила в Редакцию 31.07.96

УДК 621.039.546

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ ДЕФОРМАЦИОННОГО ПОВЕДЕНИЯ ОБОЛОЧЕК ИЗ СПЛАВА $Zr-1\% Nb$ В ПРИСУТСТВИИ ИОДА ПРИ ПОВЫШЕННОЙ ТЕМПЕРАТУРЕ

Бибилашвили Ю.К., Медведев А.В., Сотников А.С., Соколов Н.Б., Стекачев Ю.В., Андреева-Андреевская Л.Н. (ГНЦ РФ — ВНИИНМ им. А.А. Бочвара)

Опыт эксплуатации АЭС с тепловыми реакторами позволил на основе анализа причин выхода твэлов из строя установить, что взаимодействие между топливом и оболочкой при нестационарных режимах может приводить к разгерметизации твэлов вследствие коррозии под напряжением при воздействии на оболочку различных продуктов деления, в частности, иода [1].

Исследованиями иодной коррозии оболочек из сплава $Zr-1\% Nb$ последних лет установлено, что коррозионное разрушение определяют такие факторы, как концентрация иода, напряжение, температура, состояние внутренней поверхности, текстура оболочки и флюенс нейтронов [2—4].

Для предсказания поведения оболочек твэлов в аварийных условиях проведены испытания штатных оболочек твэлов ВВЭР-1000 из сплава $Zr-1\% Nb$ в присутствии иода при повышенной температуре. Установлено, что иод способствует уменьшению разрушающей деформации оболочек и времени до разрушения в диапазоне 500—750 °С. Однако его влияние проявляется лишь после превышения некоторой критической концентрации [5—7]. По оценкам [7] при выгорании 36 000 МВт·сут/т по урану содержание иода в твэлах LWR должно составлять $\sim 2,2$ мг/см³. Это значение получено в предположении его равномерного распределения по свободному объему и относительного выделения, равного среднему для газообразных продуктов деления. Однако перераспределение продуктов деления наряду с дополнительным увеличением выделения при растрескивании топливных таблеток во время скачкообразного изменения мощности и при аварийных режимах с потерей теплоносителя может создавать гораздо более значительную локальную концентрацию иода на оболочке твэла. Одновременно следует учитывать выход некоторого количества вследствие радиолитического распада иодида цезия. Должно быть принято во внимание образование уранатов и молибдатов цезия, которое резко повышает парциальное давление иода, способствуя тем самым коррозионному растрескиванию оболочки. Кроме того, многочисленными экспериментами доказано независимое выделение иода и цезия из топлива [8].