

МЕТОДИКА ИССЛЕДОВАНИЯ ГРАФИТОВЫХ МАТЕРИАЛОВ В СРЕДЕ КИСЛОРОДА ПОД ДЕЙСТВИЕМ ОБЛУЧЕНИЯ ЭЛЕКТРОНАМИ

*В.Ф. Зеленский, Н.П. Одейчук, И.А. Петельгузов, В.П. Рыжов, В.Н. Борисенко,
А.Н. Ляшенко, В.К. Яковлев*

*Национальный научный центр
«Харьковский физико-технический институт»,
Харьков, Украина
Факс +38(057)335-17-09, тел. +38(057)335-60-04*

Представлена методика исследований коррозионной стойкости графитов марок МПГ, АРВ и ГСП (графит, связанный пироуглеродом) в среде кислорода при температуре 600 °С и давлении 0,1 МПа под действием облучения электронов на ускорителе ELIAS. Приведено описание камеры облучения для испытаний образцов. Показано, что наилучшей коррозионной стойкостью под действием облучения обладает графит марки ГСП плотностью 1,8...1,9 г/см³ производства ННЦ ХФТИ.

Для проведения экспериментов по окислению образцов графита в процессе облучения использовали ускоритель электронов ELIAS, имеющий следующие характеристики:

- энергия электронов в пучке 2...3 МэВ;
- ток пучка 1...1000 мкА.

Ускоритель состоит из генератора первичных электронов, который находится внутри стального корпуса (рис. 1), электропровода с системами настройки и управления пучком, системой вакуумной откачки до 10⁻⁷...10⁻⁸ мм рт. ст. (рис. 2) и камерой облучения, в которой размещены облучаемые материалы (рис. 3).

Образовавшиеся в генераторе первичные электроны с помощью системы настройки и управления формируются в электропроводе до требуемых параметров по энергии, току и площади облучения и направляются в камеру облучения. Выбор параметров пучка, времени облучения и среды, в которой находятся исследуемые образцы, зависит от целей эксперимента.



Рис. 1. Генератор пучка первичных электронов



Рис. 2. Электропровод с вакуумной системой откачки, системами настройки и управления пучком



Рис. 3. Внешний вид камеры для облучения образцов

1. РАЗРАБОТКА И ИЗГОТОВЛЕНИЕ КАМЕРЫ ДЛЯ ОБЛУЧЕНИЯ

При разработке конструкции камеры исходили из требования ее универсальности, т.е. возможности ее использования для различных образцов и целей экспериментов.

Камера (рис. 4) представляет собой цилиндр 1 с внутренним диаметром 100 мм, наружным диаметром 112 мм и длиной 140 мм, выполненный из нержавеющей стали.

В конструкции камеры предусмотрены: клапаны 2 для вакуумирования объема камеры и подачи требуемой газообразной среды; моновакууметр 3 - для контроля давления среды, в

которой находятся исследуемые образцы; фланец 4 - для соединения камеры с электропроводом и высоковакуумной системой ускорителя; водоохлаждаемая крышка камеры 5; гермовводы 6 - для подсоединения термопар, контролирующей температуру исследуемых образцов; фланец 7 с приспособлением - для крепления образцов; диафрагма 9 из нержавеющей стали диаметром 40 мм, толщиной 80 мкм, служащей для разделения высоковакуумной части электропровода и объема камеры, в которой расположены образцы; фланец 10 - для крепления крышки камеры.

Внешний вид камеры облучения в сборе приведен на рис. 5.



Рис. 4. Конструктивные элементы камеры облучения: 1 - корпус камеры; 2 - клапаны для вакуумирования объема камеры и подачи требуемой газообразной среды; 3 - моновакууметр; 4 - фланец для подсоединения камеры к электропроводу; 5 - водоохлаждаемая крышка камеры; 6 - гермоввод для подключения термопар; 7 - фланец для крепления облучаемых образцов; 8 - облучаемые образцы; 9 - диафрагма; 10 - фланец для крепления водоохлаждаемой крышки камеры



Рис. 5. Камера для облучения образцов в сборе

2. ПОДГОТОВКА ОБРАЗЦОВ ДЛЯ ПРОВЕДЕНИЯ КОРРОЗИОННЫХ ИСПЫТАНИЙ

Для исследования коррозионной стойкости использовали графит ГСП различной плотности, изготовленный по разработанной в ННЦ ХФТИ газофазной технологии, основанной на уплотнении пористых заготовок из порошков графита пиролизическим углеродом, осаждающимся на нагретых до ~ 900 °С поверхностях при разложении метана [1-3].

В качестве свидетелей использовали образцы графитов АРВ и МПГ, производящиеся в Российской Федерации и используемые в реакторостроении [4-7].

Заготовки графита ГСП были изготовлены по различным технологическим режимам и имели различную конечную плотность. В качестве исходных заготовок для получения испытательных образцов были выбраны макеты шаровых твэлов (без урана) диаметром ~ 60 мм, а также диски из заготовок конструкционного графита ГСП диаметром ~ 120 мм и высотой 30 мм, отрезанные из заготовок высотой ~ 800 мм. Макеты шаровых твэлов имели плотность 1,77 и 1,84 г/см³, а заготовки конструкционного графита – 1,52 и 1,9 г/см³. Плотность заготовок графитов АРВ и МПГ составляла 1,65 и 1,74 г/см³ соответственно.

Образцы для проведения испытаний получали путем резания заготовок алмазным кругом со скоростью его вращения ~ 20000 об./мин. Образцы имели форму параллелепипеда с размерами граней

2х3х40 мм. Внешний вид исходных образцов показан на рис. 6.

Образцы, имеющие форму параллелепипеда размером 2х3х20 мм, размещали на фланце в специальных держателях (рис. 7) и устанавливали в камеру для облучения (рис. 8). Камеру с помощью фланцевого соединения закрепляли к высоковакуумному входу электропровода ускорителя, в центральную часть образцов вводили хромель-алюмелевые термопары и устанавливали водоохлаждаемый фланец. Затем часть объема камеры, находящуюся между диафрагмой и высоковакуумной частью электропровода ускорителя, откачивали до разряжения $\sim 10^{-7} \dots 10^{-8}$ мм рт. ст., а часть камеры с исследуемыми образцами - до $\sim 10^{-2}$ мм рт. ст. В камеру с образцами подавался кислород до давления 0,1 МПа.

Исследования коррозионной стойкости образцов графита проводили под воздействием пучка электронов при температуре 580...650 °С и давлении кислорода $\sim 0,1$ МПа в течение 0,5 и 1 ч. Параметры пучка электронов в процессе облучения следующие:

- энергия электронов в пучке $\sim 2,5$ МэВ;
- ток пучка ~ 230 мкА.

Исходные характеристики исследуемых образцов и результаты изменения их массы в процессе окисления в среде кислорода при различных временах облучения электронами приведены в табл. 1 и 2.

Поверхность образцов после облучения в течение 1 ч приведена на рис. 9.

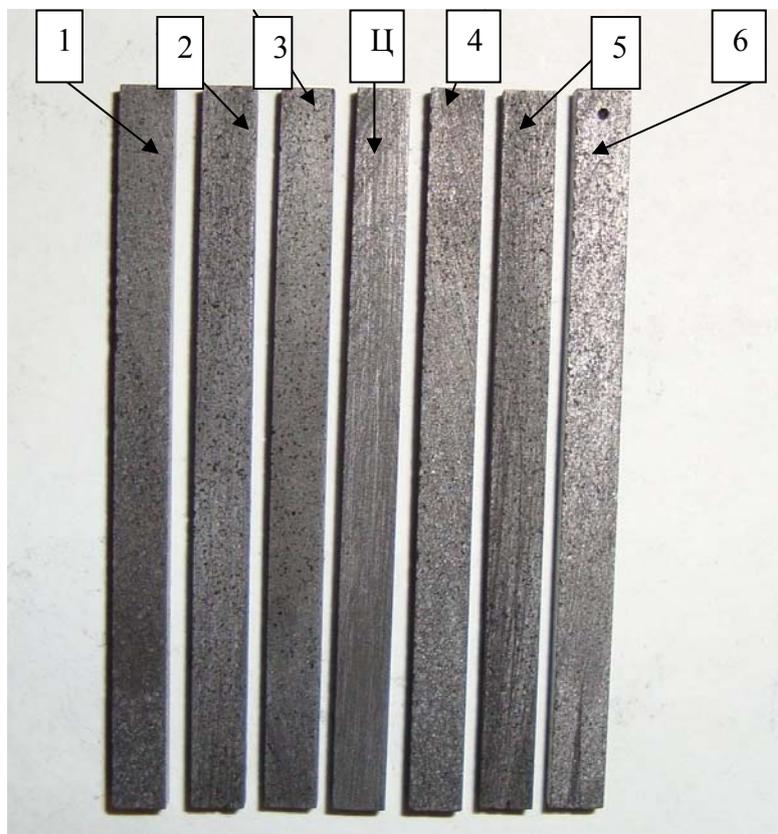


Рис. 6. Внешний вид образцов для проведения испытаний: 1 - ГСП-1,9; 2 - ГСП-1,84; 3 - ГСП-1,77; Ц - МПГ; 4 - ГСП-1,9; 5 - ГСП-1,77; 6 - АРВ

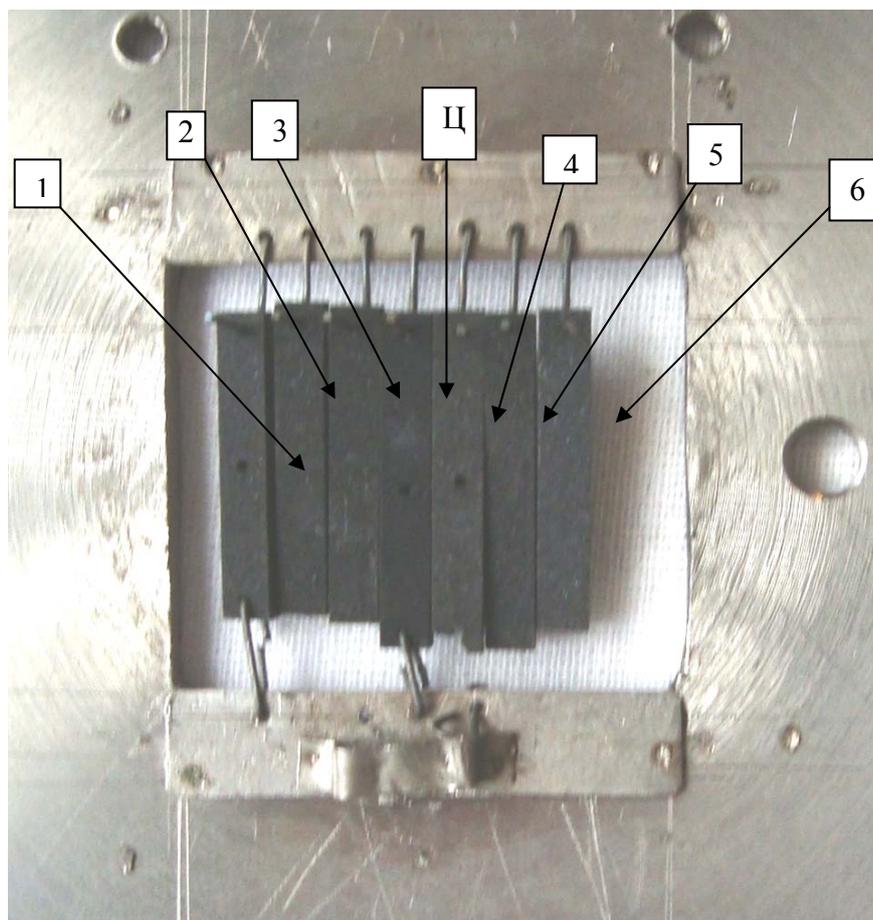


Рис. 7. Фланец с закрепленными образцами. Обозначения те же, что и на рис. 6

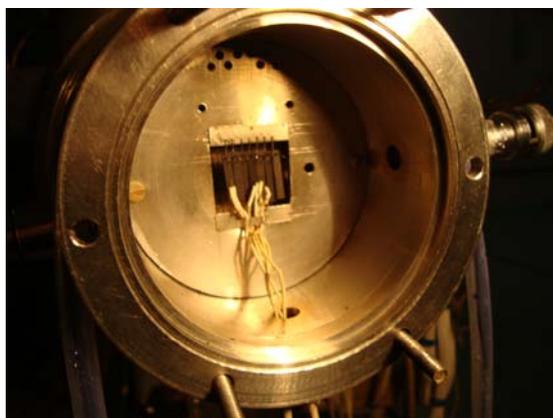


Рис. 8. Внутренняя часть камеры облучения с установленными образцами и термопарами

Исходные характеристики образцов и изменение их массы после выдержки в кислороде при температуре ~ 600 °С и при облучении электронами в течение 0,5 ч

Таблица 1

Материал	Плотность образцов, г/см ³	$\Delta P/S$, мг/см ²	ΔP , мг	$S_{\text{пов}}$, см ²	Расположение образца* 123Ц456	Измеренная температура, °С
1. АРВ	1,63	-2,26	-4,4	1,946	6	-
2. АРВ	1,66	-3,79	-8,0	2,111	5	-
3. ГСП-1,52	1,59	-4,29	-8,5	1,983	4	-
4. ГСП-1,52	1,574	-1,81	-3,8	2,104	1	-
5. МПГ	1,764	-4,38	-9,0	2,056	2	-
6. МПГ	1,788	-6,32	-13,4	2,12	З _{ТЕРМ}	580
7. МПГ	1,812	-7,48	-15,8	2,112	Ц _{ТЕРМ}	630

*Расположение образцов в камере облучения показано на рис. 7.

Исходные характеристики образцов и изменение их массы после выдержки в кислороде при температуре ~ 600 °С и при облучении электронами в течение 1 ч

Материал	Плотность образцов, г/см ³	$\Delta P/S$, мг/см ²	ΔP , мг	$S_{\text{пов}}$, см ²	Расположение образца* 123Ц456	Измеренная температура, °С
1. ГСП-1,77	1,764	-4,01	-8,3	2,068	5	-
2. ГСП-1,77	1,755	-4,99	-9,8	1,963	3	-
3. ГСП-1,84	1,813	-4,18	-8,3	1,984	2	-
4. ГСП-1,9	1,925	-5,38	-11,7	2,174	4 _{ТЕРМ}	640
5. ГСП-1,9	1,886	-2,1	-4,2	2,0	1 _{ТЕРМ}	580
6. АРВ	1,654	-1,65	-3,4	2,058	6	-
7. МПГ	1,775	-10,35	-22	2,125	Ц _{ТЕРМ}	650

*Расположение образцов в камере облучения показано на рис. 7.

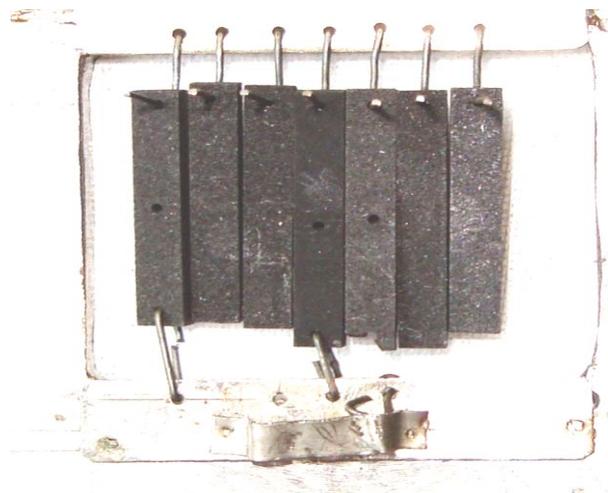


Рис. 9. Поверхность образцов после облучения в течение 1 ч

ВЫВОДЫ

1. Подготовлен ускоритель ELIAS к проведению коррозионных испытаний графита в среде кислорода под облучением пучком электронов.

2. Разработана и изготовлена камера для облучения образцов.

3. Проведены коррозионные испытания различных марок графита в среде кислорода при температуре ~ 600 °С, при давлении кислорода до 0,1 МПа, при воздействии на них потока электронов с параметрами пучка:

- энергия электронов в пучке ~ 2,5 МэВ;
- ток пучка ~ 230 мкА.

4. Показано, что под облучением процесс окисления графитов идет существенно интенсивнее, и скорость окисления возрастает в 5-10 раз (см. табл.1, № 4, 5 и табл.2, № 3).

5. Скорость окисления под облучением зависит от расположения образцов в камере облучения (а следовательно, от его температуры) и для образца с одинаковыми характеристиками может отличаться примерно в 2 раза (см. табл.1, № 4 и 5).

6. Наилучшей коррозионной стойкостью при одинаковых условиях эксперимента обладает графит ГСП плотностью 1,77...1,9 г/см³.

ЛИТЕРАТУРА

1. М.Р. Odeychuk, V.F. Zelenskiy, V.K. Yakovlev, et al. The current state of the HTGR core component fabrication technologies in the Ukraine and some properties of materials and products // *Status and Prospects for Gas Cooled Reactor Fuels. Proceedings of two IAEA meetings held in June 2004 and June 2005, IAEA-TECDOC-CD-1614, IAEA, Vienna. 2009, p. 29-53.*
2. М.Р. Odeychuk Graphites and CCM for nuclear reactor plants: Ukraine's experience // *PROCER. Proceedings of International Conference on Ceramic Processing. December 21-24, 2004. HRDD Guest House, Anushakti Nagar, Mumbai, India. - Bombay Metropolitan Regional Chapter, Indian Ceramic Society, 2004, p.103-123.*
3. V.F. Zelenskiy, V.A. Gurin, Yu.F. Konotop, et al. Fabrication of HTGR core components by the method of volume gas-phase impregnation of porous media with pyrocarbon - main characteristics of the materials and products // *The status of graphite development for gas cooled reactors (Proceedings of a Specialists Meeting held in Tokai-mura, Japan, 9-12 September 1991), IAEA; February 1993, p.123-133.*

4. Н.М. Бескорвайный, Б.А. Калинин, П.А. Платонов, И.А. Чернов. *Конструкционные материалы ядерных реакторов*. М.: «Атомиздат», 1995, с. 674.
5. А.В. Субботин, А.С. Покровский, Д.В. Харьков. Исследование радиационной ползучести реакторного графита // *Атомная энергия*. 2008, т. 105, в. 2, с. 83-87.
6. Ю.С. Виргильев, И.П. Калягина, В.Ф. Земляникин и др. Графит для высокотемпературного газоохлаждаемого реактора ГТ-МГР // *Атомная энергия*. 2007, т. 103, в. 4, с. 235-237.
7. Ю.С. Виргильев, А.Н. Селезнев, А.А. Свиридов, И.П. Калягина. Реакторный графит: разработка, производство и свойства // *Российский химический журнал*. 2006, т. 1, №1, с. 4-12.

Статья поступила в редакцию 30.08.2010 г.

МЕТОДИКА ДОСЛІДЖЕННЯ ГРАФІТОВИХ МАТЕРІАЛІВ У СЕРЕДОВИЩІ КИСНЮ ПІД ДІЄЮ ОПРОМІНЕННЯ ЕЛЕКТРОНАМИ

*В.Ф. Зеленський, М.П. Одейчук, І.А. Петельгузов, В.П. Рижов,
В.М. Борисенко, О.М. Ляшенко, В.К. Яковлев*

Представлена методика досліджень корозійної стійкості графітів марок МПГ, АРВ та ГСП в середовищі кисню при температурі ~600 °С і тиску 0,1 МПа під дією опромінення електронів на прискорювачі ELIAS. Наведено опис камери опромінення для випробувань зразків. Показано, що найкращою корозійною стійкістю під опроміненням має графіт марки ГСП густиною 1,8...1,9 г/см³ виробництва ННЦ ХФТІ.

RESEARCH METHODS OF GRAPHITE MATERIALS IN OXYGEN UNDER IRRADIATION OF ELECTRONS

*V.F. Zelenskiy, N.P. Odeychuk, I.A. Petelguzov, V.P. Rizhov, V.N. Borisenko,
A.N. Liashenko, V.K. Yakovlev*

The paper presents the results of the corrosion resistance of MPG, ARV and GSP graphite grades in oxygen at temperature of 600 °C and pressure of 0.1 MPa under the influence of electron irradiation on the ELIAS accelerator. The description of the irradiation camera for samples test is given. It is shown that the best corrosion resistance under irradiation in the temperature range has GSP graphite. It is shown that the best corrosion resistance under irradiation has GSP graphite with density of 1,8...1,9 g/cm³ of NSC KIPT production.