

反应堆内石墨电阻的测量

李文焱 李耀鑫 张肇源

本文主要报导在中国科学院原子能研究所研究性重水反应堆内测量石墨电阻的技术,其中包括试样的辐照装置,电阻测量的方法,并详细地讨论了实验误差,最后对测量结果作了简单的分析。

一、引言

众所周知,石墨有良好的物理和机械性能,是一种重要的反应堆材料。但在反应堆辐照作用下,石墨的结构和性能就要发生很大的变化,给反应堆的工程设计和正常运行都带来极大的麻烦。

在石墨的辐照损伤中,以电阻的变化最为显著。虽然这个性能不是反应堆工程设计的直接参数,但由于它在辐照下引起的变化极其敏感,加上电阻测量方法简单、精确度又高,所以人们对石墨电阻的辐照效应进行了大量的研究和应用。纽伯特(T. J. Neubert)^[1]第一次测定了石墨在中子辐照后的电阻变化,得出了辐照后电阻百分增加的倒数与积分中子通量的倒数成线性的经验公式。此后,普里迈克(W. Primak)^[2]利用该关系式以电阻变化来测量中子通量,并应用于探测石墨反应堆管道的辐照损伤率。

但是遗憾的是所有这些工作都是取试样在堆内辐照后,待放射性强度衰变到可进行操作的允许范围内再进行电阻测量,最后与辐照前数据作比较。显然,这种实验方法不可避免会有如下的缺点:

(1) 辐照后进行电阻测量免不了发生退火效应。据纽伯特等^[3]的报告,辐照引起的石墨电阻变化在室温下也会发生退火效应。他所得的结果表明,辐照后的石墨在 25°C 下经过一年时间,其电阻的增加量可减少 20% 左右。这说明在辐照后测得的结果并没有正确地反映辐照所产生的全部变化。

(2) 一个实验数据是测量若干个试样后求平均值得到的。要测量电阻随积分中子通量的变化就需要很多试样,这不仅浪费材料,而且还由于辐照条件不可能做到完全一样,以致实验结果的处理变得十分复杂。

然而,如果在堆内直接进行电阻测量即可克服上述的缺点。为此我们试图掌握在反应堆内测量石墨电阻的方法,然后将其应用于探测材料的辐照损伤和石墨的其他辐照效应的研究。本文主要报导在反应堆内测量石墨电阻的技术,其中包括试样的辐照装置,电阻的测量方法;并详细讨论了实验误差;最后对测量结果作了简单的分析。

二、实验方法

我们的实验工作都是在中国科学院原子能研究所研究性重水反应堆上进行的,有关实验孔道的情况请参阅文献[4]。现将本实验中采用的试样、辐照装置及电阻的测量方法介绍于下。

试样 实验试样都取自大块的(600 × 150 × 150 毫米)国产石墨。试样的尺寸为直径 5 毫米、长度 65 毫米的圆柱棒。

辐照装置 先在试样上钻四个直径为 0.5 毫米的小孔,其中两个离试样两端 8 毫米,另外两个各离中心 20 毫米左右。将试样套入内径为 5 毫米、长为 30 毫米的氧化铝瓷管,瓷管是专门用来固定试样并使试样与铝照射罐保持绝缘。然后用直径 0.5 毫米的导线穿过小孔,导线与试样必须紧密结合以保持良好的接触。再在一端弯钩防止因松弛而脱落(见图 1)。这样就建立了电阻测量中的两组接触——电位接触和电流接触。紧靠试样两端的一组(图 1 中的 a 和 d)为电流接触,另一组(图 1 中的 b 和 c)为电位接触。最后设法用金属丝将瓷管固定在铝照射罐内。使试样保持铅直不与罐壁接触。在我们的实验中,电流接触和电位接触的导线分别用康铜线和铜线,所以导线 a 和 b, c 和 d 又各自组成了两组铜-康铜热电偶,以便测量试样两端的温度。

所有导线的长度均为 5.5 米,可以足够引到实验孔道外以便与测量导线连接。导线用瓷管或塑料套管绝缘。由于靠近照射罐上端一米左右的导线,在实验时经常伸入反应堆活性区,故用内径 3 毫米的双孔氧化铝瓷管绝缘,其余部分则用双层塑料套管,以免磨破而短路。

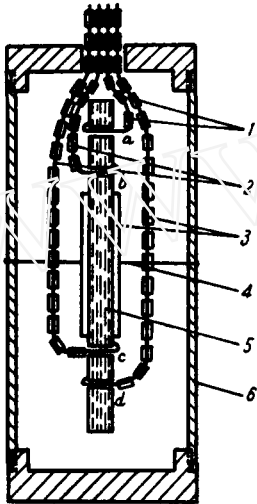


图 1 试样的辐照装置
a 和 d——电流接触;
b 和 c——电位接触。
1——康铜线; 2——铜线;
3——绝缘瓷管; 4——支架;
5——试样; 6——铝照射罐。

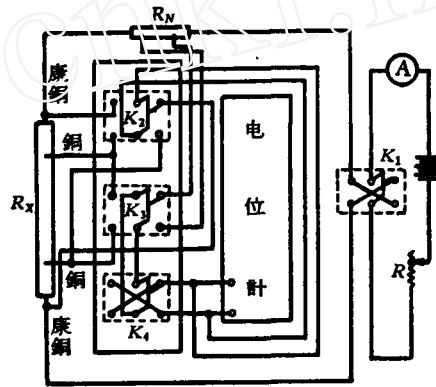


图 2 电阻和温度测量线路

K_1 ——电流换向开关;
 K_2 ——温度测量开关;
 K_3 —— V_x, V_N 测量开关;
 K_4 —— V_x, V_N 换向开关。

实验时必须小心地将此铝照射罐吊入活性区,以免在按装或实验操作时影响导线与试样的接触。导线均从孔道塞的中央小孔引出。最后再将导线连接到堆小室的特制接线板上,由固定电缆引到大厅值班桌上进行电阻和温度的测量。

测量方法 电阻是用补偿法测量的,测量线路如图 2 所示。用直流电源与试样(电阻为 R_x)、标准电阻 R_N 建立回路,用可变电阻器 R 调节工作电流,然后由电位计测量在 R_x 与 R_N 上的电压降 V_x 与 V_N ,最后由公式 $R_x = R_N \frac{V_x}{V_N}$ 计算求得 R_x 。

试样两端的温度是用铜-康铜热电偶通过开关 K_2 在同一个电位计上测量后换算成温度的^[5]。

三、测量误差的讨论

以下我们对在电阻和温度的测量中可能影响实验结果的几个因素分别作简短的讨论。

1. 电阻测量的准确度

(1) **接触方法与刀口法的偏差** 电位导线与试样插入接触法所产生的接触电势小于 0.00001 伏, 这对实验结果只能产生 0.05% 的误差。但由于插入接触法毕竟与通常被认为标准的刀口接触法不同, 所测得的 V_x 包括了电位接触的接触电阻的电压降。为了比较两者的差异, 在同样条件下, 我们对七个试样用刀口法和插入法分别进行了电阻的测量, 并用下式

$$\bar{S}^2 = (\sum R_v^2 + f \sum R_0^2 - 2f \sum R_0 R_v) / n$$

计算其偏差 \bar{S} 。式中 R_0 为用插入接触法测得的电阻, R_v 为同一个试样用刀口法测得的电阻,

f 是与接触方法有关的因子, 可由 $f = \frac{1}{n} \sum \frac{R_v}{R_0}$ 求得, n 为试样的个数。实验结果列于表 1,

经计算得出此偏差不大于 0.03%。这说明在室温下插入接触法的接触性能良好。

表 1 用刀口法和插入法测得的电阻之比较

试样编号	1	2	3	4	5	6	7
R_v , 欧	0.01283	0.01258	0.01259	0.01975	0.01177	0.01944	0.01189
R_0 , 欧	0.01304	0.01277	0.01283	0.01998	0.01185	0.01949	0.01230

$$f = 0.98516, \sum R_v^2 = 0.0015293, \sum R_0^2 = 0.0015685, f \sum R_0^2 = 0.0015223, \\ 2f \sum R_0 R_v = 0.0030514, \bar{S}^2 = 0.00000007.$$

(2) **冷热循环的影响** 辐照试样在反应堆启动和停闭时受到冷热循环可能会引起接触的松动。为此我们在堆外作了冷热循环的模拟试验。因为堆内测量是在反应堆功率等于 2000 瓦和 3000 瓦时进行的, 在此功率下试样的温度不超过 200°C, 所以模拟条件为 25—200°C, 次数为 17 次。在每次循环后都测量了电阻, 所得的结果列于表 2。其平均值标准偏差不超过十万分之二。经过多次冷热循环以后, 接触电势仍没有变化。

表 2 石墨在多次冷热循环后的电阻值

试验序号	1	2	3	4	5	6	7	8	9
电阻值, 欧	0.0119	0.0118	0.0118	0.0118	0.0118	0.0118	0.0118	0.0117	0.0117
试验序号	10	11	12	13	14	15	16	17	
电阻值, 欧	0.0118	0.0118	0.0119	0.0118	0.0118	0.0119	0.0118	0.0118	

$$\bar{S} = \sqrt{\frac{\sum (\bar{A} - A)^2}{n(n-1)}} = 0.000013 \quad \bar{A} \text{——电阻的平均值; } A \text{——电阻的测量值.}$$

(3) **石墨和导线氧化的影响** 在空气和中子的作用下, 石墨与铜丝的接触是否会由于氧化而导致接触性能变坏。我们已知石墨与氧的反应起始温度为 450°C。若考虑空气中的其他介质, 则在 400°C 的空气中, 其腐蚀速率也是可以忽略的。在中子辐照下, 石墨氧化的起始温度预料会有所降低, 但在实验条件下未曾发现有石墨氧化现象。只有铜丝在 200°C 辐照后有氧化现象, 当氧化严重时, 接触电阻显著地增加而且很不稳定。

(4) **接线长度的影响** 测量迴路的总长度约为 20 米, 导线的总电阻达 5 欧左右。我们知道, 在测量小电阻(小于 1 欧)时, 必须考虑接线的长度。曾经用愷尔文双臂电桥进行实验。根据该电桥的工作原理, 在测量条件下接线电阻与电桥内电阻相比小得可以忽略时, 才不致影响实验读数的准确度。但在辐照下测量电阻时, 接线过长是无法避免的, 这个缺点可以用补偿法来克服。用补偿法测得的电阻值与外电阻的大小无关, 即与接线的长短无关。

中子辐照也引起铜丝电阻的增加, 但其增加甚小, 最大不会增加百分之一, 而且不管增加

有多大,我們在測量中可以認為它是一種外電阻而不予以考慮。

(5) 溫度對測量結果的影響 在輻照過程中,試樣兩端的溫差最大不超過 1°C 。實驗中為了消除此溫差電勢和接觸電阻所引入的誤差,在每次測量時都借用換向開關 K_1 (圖2)先後通入正向和反向電流,測量正向及反向的 V_x 和 V_N ,取其平均值。

測量時工作電流的大小取決於所用儀器的精確度。我們所使用的工作電流為1.2安。顯然此電流值較大,以致在測量過程中試樣有明顯的升溫。測量前後的溫差有時最大竟達到 20°C 。但可以合理地認為在每次測量中試樣的溫度是相等的。

(6) 儀器的準確度 實驗中使用的電位計準確度達到 0.00001 伏,檢流計的靈敏度為 10^{-8} 安/毫米,標準電阻的相對誤差為萬分之一,由此計算得出測量結果的誤差為 0.8% 。

由以上的分析估計實驗結果的誤差為 1% 左右。

2. 溫度測量的準確度

測量溫度所用的熱電偶,其結點未經焊接,測量所得的溫度應當是兩結點間的平均溫度。為了比較有焊點與無焊點熱電偶測得溫度的差別,測量了在 $25-200^{\circ}\text{C}$ 溫度範圍內兩者所指示的溫度,結果表明平均差別不超過 1°C ,所以無焊點熱電偶可以用來準確地測量溫度。

所用的熱電偶事先都用標準的鉍-鉍鎢熱電偶作了相對刻度,其熱電勢與溫度的線性關係在 $25-200^{\circ}\text{C}$ 範圍內甚好。

四、實驗結果及其分析

輻照前,我們對石墨進行了電阻率與電阻溫度系數的測定。石墨在平行和垂直擠壓方向上的電阻率分別為 $\rho_a = 600 \times 10^{-6}$ 歐姆·厘米和 $\rho_c = 1050 \times 10^{-6}$ 歐姆·厘米。兩者相差不到一倍,與天然的石墨單晶相比($\rho_c/\rho_a = 1000$),所用石墨的各向異性不甚顯著。因此我們只採用了平行於擠壓方向的試樣。同時為了簡便起見,以下除個別試樣注明方向外,其他將不再注明試樣的方向。

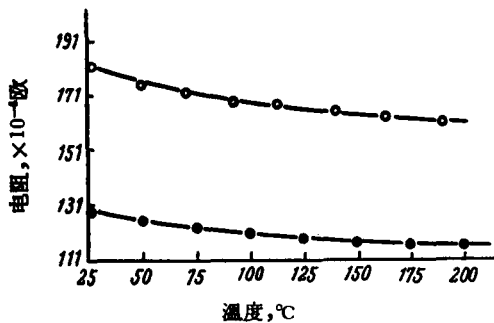


圖3 石墨的電阻溫度曲線
○——垂直方向; ●——平行方向。

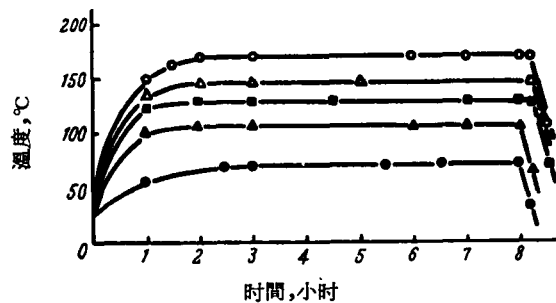


圖4 石墨的溫度從開堆到停堆一周期內的变化

- 6号孔道, 3000 瓦;
- 43号孔道, 2000 瓦;
- △——9号孔道, 2000 瓦;
- ▲——9号孔道, 2000 瓦;
- 9号孔道, 3000 瓦。

在 $25-200^{\circ}\text{C}$ 溫度範圍內,該石墨的電阻與溫度的關係示於圖3。由此可見,石墨的電阻隨溫度的升高而下降,在 125°C 以下曲線較陡,電阻溫度系數等於 $-120 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$,在 $125-200^{\circ}\text{C}$ 範圍內只等於 $-60 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 。

在輻照下共測定了四個石墨試樣的電阻隨熱中子積分通量的變化。輻照是在反應堆9号、

6 号、43 号实验孔道中进行的。热中子积分通量是由瞬时热中子通量乘开堆时间得到的；辐照温度是用铜-康铜热电偶测得的。石墨试样在 9 号、6 号、43 号孔道内，反应堆功率分别为 2000 瓦或 3000 瓦时，反应堆从启动到停闭一周期内的温度变化示于图 4。由此可以认为在反应堆功率为恒定时，试样是在恒温下辐照的。

各个试样的辐照条件和电阻测量结果列于表 3。以下我们对实验结果作简单的讨论。

表 3 试样的辐照条件和测量结果

编号	实验孔道(No.)	反应堆功率,瓦	辐照温度,℃	热中子积分通量,中子/厘米 ²	电阻百分增加,%
K1	9	3000	130	2.0×10^{18}	12.6
K1	9	2000	105	7.6×10^{18}	62.0
K2	6	3000	170	5.5×10^{18}	22.0
K3	9	2000	145	3.6×10^{18}	12.4
K4	43	2000	72	1.3×10^{18}	4.6

1. 石墨电阻随热中子积分通量的变化

图 5 示出了石墨的电阻随热中子积分通量的变化。数据是每日开堆前和在辐照下测得的。图中的峰值表明在停堆和开堆时试样的电阻随温度的变化而突然上升和下降。因为石墨的电阻温度系数是负值，所以停堆时电阻增加而开堆时电阻降低。由图可见，电阻随热中子积分通量的变化大致可归纳如下：在辐照初期，石墨电阻随热中子通量的累加而增大，变化十分敏感。例如辐照温度为 130℃ 时，热中子积分通量等于 2×10^{18} 中子/厘米² 时，电阻增加 15.0%；辐照温度为 105℃ 时，电阻增加速率更快，当积分通量达到 4×10^{18} 中子/厘米² 时，电阻增加达 35%，之后电阻的增加速率略见减少，最后在 9.8×10^{18} 中子/厘米² 时，电阻总增加 73.2%。

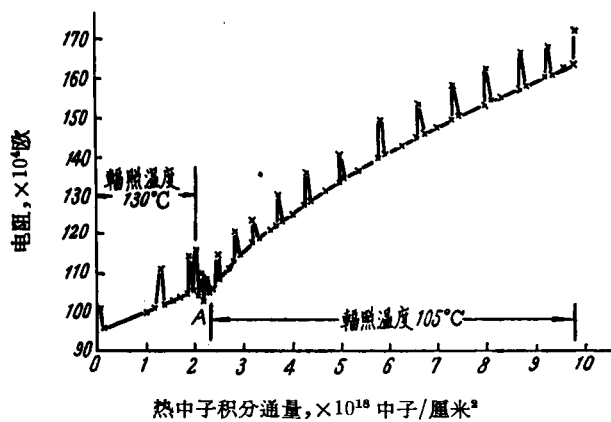


图 5 石墨电阻随热中子积分通量的变化
(辐照管道为 9 号)

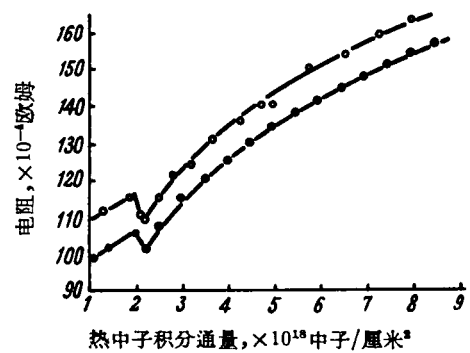


图 6 开堆前与开堆时测得的电阻值
○——每日开堆前测得的电阻值；
●——开堆时测得的电阻值。

实验结果可作如下定性地解释。中子辐照在石墨晶体中产生空位和间隙原子。缺陷的产生使电导率减少，即电阻增加。在辐照初期，缺陷的生成率正比于辐照通量。之后随着缺陷密度的不断增加，部分缺陷得到了回复，此时缺陷的生成率较初期有所降低，因而电阻增加率减少。

图 6 中的两条曲线是由每日开堆前测得的电阻值(包括温度影响)和由开堆时测得的电阻值(温度恒定)作出的。这两条曲线基本上是平行的，但是由于辐照温度较开堆前堆温更为稳定，所以在辐照下测得的数据无需作温度效应的修正。

2. 辐照温度对石墨电阻变化的影响

在中子辐照下,石墨电阻的变化对辐照温度是非常敏感的。紐伯特^[1]曾經認為,在較高温度下辐照除产生缺陷外,同时存在缺陷的回复。这似乎可以由图5中电阻变化的极小值A得到証明。当时反应堆功率連續上升到3600,4000,6000瓦,試样的温度随之上升到147℃,155℃,201℃,这比以前的辐照温度130℃高出很多。因此我們得到以下的結論:在相同的辐照通量下,辐照温度愈低,电阻百分增加就愈大。我們对三个石墨試样所測得的结果示于图7。K₄試样(曲线a)不遵从这个規律可以作如下的解释。K₄試样是在石墨反射层43号孔道中辐照的。显然在石墨层孔道中,对材料辐照损伤起主要作用的快中子密度比中央孔道的要小得多。粗略地估計在43号孔道中,能量在热能以上的所有慢化中子的密度与热中子密度之比約为1:5,而在9号、6号孔道此比值为1:1^[6]。若以慢化中子积分通量作横座标,K₄曲线即移至K₁之上(即曲线b)。

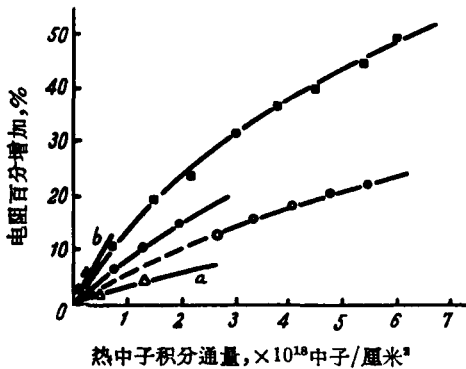


图7 辐照温度对石墨电阻变化的影响

- K₁,105℃; ●—K₁,130℃;
- K₂,170℃;
- △—K₄,72℃,以热中子积分通量为横坐标;
- ▲—K₄,72℃,以慢化中子积分通量为横坐标。

通量作横座标,K₄曲线即移至K₁之上(即曲线b)。

3. 电阻百分增加倒数与热中子积分通量倒数間的关系

紐伯特得到了电阻百分增加倒数(γ_f^{-1})与热中子积分通量倒数(L^{-1})的关系如下:

$$\gamma_f^{-1} = mL^{-1} + b,$$

式中 b 和 m 分别为与材料的杂质成分和辐照温度有关的常数。 b 值的倒数即表示石墨在中子辐照下电阻增加的飽和值。应用我們的实验結果作出了 $\gamma_f^{-1}-L^{-1}$ 的曲线示于图8,曲线严格遵从紐伯特的关系式。直线的斜率 m 随辐照温度的升高而增大;直线的截距都等于1,辐照只能引起国产石墨电阻增加一倍。

4. 辐照石墨的退火效应

室温退火效应 試样 K₁ 在辐照到 9.8×10^{18} 中子/厘米² 后吊出并轉移到备用孔道,連續观察它在室温下的电阻变化。我們发现:在最初10天内,电阻的回复占总增加的6.6%;此后,电阻仍緩慢地回复,等試样的放射性强度衰变到可以允許操作的范围时,經過了三个月零七天,此时电阻的总回复达12%。

高温退火效应 我們又將試样 K₁ 和 K₂ 进行了高温退火实验,退火起始温度选择为200℃,高于300℃的退火是在 5×10^{-3} 毫米汞柱真空中进行的。在每个温度保持三小时,等冷却到室温时取出测量电阻,测量結果列于表4。以 $\frac{R_1 - R_2}{R_1 - R_0}$ 为纵座标,退火温度为横座标作出图9。由图9可見:电阻的总回复和回复率均与辐照通量有关。从曲线的斜率可以看出:

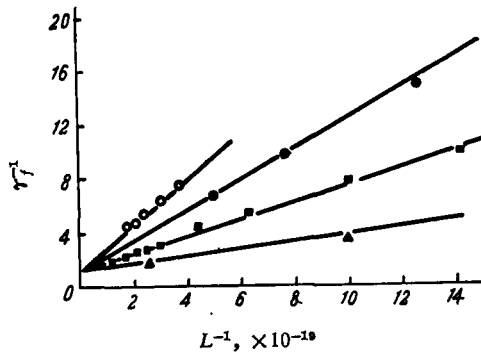


图8 石墨电阻百分增加倒数(γ_f^{-1})与热中子积分通量倒数(L^{-1})关系曲线

- K₂,170℃; ●—K₁,130℃;
- K₁,105℃; ▲—K₄,72℃(外推得到)。

表 4 辐照石墨的电阻退火

退火温度, °C	K ₁		K ₃	
	电阻值 R _a , 欧	$\frac{R_1 - R_a}{R_1 - R_0}, \%$	电阻值 R _a , 欧	$\frac{R_1 - R_a}{R_1 - R_0}, \%$
200	0.0163	4.5	0.0125	14.3
250	0.0160	9.0	0.0121	42.8
300	0.0157	13.6	0.0118	64.2
350	0.0154	18.4	0.0118	64.2
400	0.0151	23.1	0.0118	64.2
500	0.0151	23.1	0.0118	64.2
600	0.0151	23.1	0.0118	64.2
700	0.0151	23.1	0.0118	64.2

辐照到热中子积分通量较高的试样 K₁ 的电阻回复率较慢。反之, 对试样 K₃ 电阻的回复率较快。K₁ 的总回复为 23.1%, 而 K₃ 却达到 64.2%。

另外, 对于试样 K₃ 高于 300°C 的退火已无电阻的回复, 而试样 K₁, 只有在 400°C 以上的退火才不致有电阻的回复。

所有这些实验事实都可以由辐照产生缺陷的机制得到定性的表明, 即在低通量下辐照所产生的大部分缺陷较简单, 其特征激活能较小, 故在较低的温度即可回复。反之, 高通量辐照所产生的缺陷只有小部分是简单的, 而大部分是复杂缺陷, 这些缺陷有较大的特征激活能, 因而只能在较高的温度下退火才得到回复。

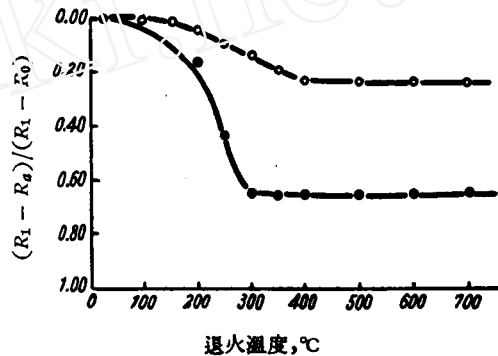


图 9 辐照石墨的电阻退火曲线
○——辐照通量为 9.8×10^{18} 中子/厘米²;
●——辐照通量为 3.6×10^{18} 中子/厘米²。

五、结 束 语

在辐照下进行物理量的测量是一项新的技术, 掌握这种技术将有助于进行反应堆材料辐照效应的研究。文中介绍了这种测量技术, 测量结果的误差为 1%。我们认为: 这种技术可以推广用于其他材料的电阻测定。

实验的结果表明: 第一, 石墨辐照后所增加的电阻在室温下有明显的退火现象, 另外由于电阻值是在一个试样上测得的, 因而在辐照下直接测定电阻不仅使数据处理变得十分简单, 而且使数据更准确地反映了辐照产生的电阻效应。

其次, 国产石墨在辐照后电阻增加与辐照通量的关系遵从纽伯特的经验公式, 所以我们可以应用国产石墨在辐照下电阻的变化来测定中子通量。

本文实验工作由吴锦祥, 钟汀庆等同志提供了许多方便, 为此表示感谢。

参 考 文 献

- [1] T. J. Neubert, ANL-5472.
- [2] W. Primak, *Nucl. Sci. and Eng.*, **2**, 49; 117; 320 (1957).
- [3] M. Burton, T. J. Neubert, *J. Appl. Phys.*, **27**, 557 (1956).
- [4] 中国科学院原子能研究所, 中国科学院研究性重水反应堆介绍, 原子能科学技术, 第1期, 6 (1959).
- [5] 张肇源、申树棠, 辐照样品温度测, 原子能科学技术, 第9期, 670 (1962).
- [6] 黄祖洽, 研究性重水反应堆的物理计算, 原子能科学技术, 第3期, 136 (1959).

(编辑部收稿日期 1964年4月10日)

www.cnki.net