

выгорания. Изменение индекса роста для образца, облучавшегося при 500° С, свидетельствует о том, что радиационный рост имеет место и при этой температуре.

Замедление радиационного роста урана со слабо выраженной текстурой [010] было впервые отмечено Бакли [8], который связывал это явление с изменением в процессе радиационного роста степени выраженности текстуры. Предполагалось, что обусловленная радиационным ростом деформация зерен поликристаллического урана путем двойникования приводит к развороту отдельных частей кристаллитов, в результате чего изменяется степень текстуры стержня в целом или даже ее тип. Аналогичным образом наличие прочного покрытия может затруднить радиационный рост уранового сердечника и тем самым способствовать уменьшению текстуры.

Результаты проведенного исследования удовлетворительно согласуются с представлениями Бакли. Наблюдавшееся уменьшение радиационного роста по сравнению с его теоретическим значением, по-видимому, обусловлено сдерживающим влиянием покрытия и взаимодействием зерен поликристаллического урана.

Однако следует отметить, что при испытании полнотражных твэлов имеются и другие

трудноучитываемые факторы, такие, как ползучесть под облучением, ползучесть в результате циклических изменений температуры, распухания и т. п., которые оказывают влияние на формоизменение уранового сердечника. Поэтому нельзя ожидать строгой корреляции между коэффициентом радиационного роста G_i и индексом роста урана.

Поступила в Редакцию 22/VII 1968 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Е. Иванов и др. «Атомная энергия», 16, 325 (1964).
2. А. Н. Холден. Физическое металловедение урана. М., Metallurgizdat, 1962.
3. В. Е. Иванов и др. «Атомная энергия», 18, 357 (1965).
4. П. И. Христенко и др. В кн. «Труды Второй Международной конференции по мирному использованию атомной энергии (Женева, 1958)». Докл. советских ученых. Т. 3. М., Атомиздат, 1959, стр. 655.
5. В. Е. Иванов и др. «Порошковая металлургия», № 5, 46 (1965).
6. Sturcken, Mc-Donnell. J. Nucl. Mod., 7, 85 (1962).
7. S. Buckley. In book «Uranium and Graphite». London, 1962, p. 41.
8. E. Ibrahim. J. Instrum. Metals, 93, 117 (1964).
9. G. Slattery, I. Mcleish. J. Nucl. Mat., 17, 192 (1965).

Термический метод удаления стальных оболочек с окисных твэлов

Г. П. НОВОСЕЛОВ, А. Т. АГЕЕНКОВ

УДК 621.039.53

В настоящее время в реакторостроении широко используется окисное ядерное горючее в оболочках из нержавеющей стали. В технологических схемах регенерации ядерного горючего процессы разделки и вскрытия «горячих» тепловыделяющих сборок и элементов занимают особое место.

Разрушить оболочки твэлов можно механическим воздействием. При этом горючее обнажается, но не отделяется от материала оболочки. Такой метод подготовки горючего приемлем в гидрохимических схемах регенерации, в которых производится селективное растворение горючего. В технологических схемах с прямым галогенированием (например, фтором) окисного горючего необходимо отделить горючее от конструкционного материала. С этой целью и проводилась данная работа.

В работе исследовался термический метод вскрытия окисных твэлов со стальными оболоч-

ками. Идея метода состоит в следующем: тепловыделяющие сборки без предварительной разделки нагревают до температуры, при которой стальные детали плавятся*, после чего сталь в расплавленном состоянии отделяют от ядерного горючего. Очевидно, термический метод может быть практически целесообразным лишь в том случае, если горючее не смачивается расплавленной сталью и химическое взаимодействие между ними отсутствует. Поскольку свободные энергии образования окислов урана и плутония (рис. 1) меньше, чем свободные энергии образования окислов компонентов нержавеющей стали, то значительного восстановления UO_2 и PuO_2 компонентами нержавеющей стали не должно быть даже при высокой температуре.

* Подобный метод вскрытия твэлов предложен Х. Кеннет [1].

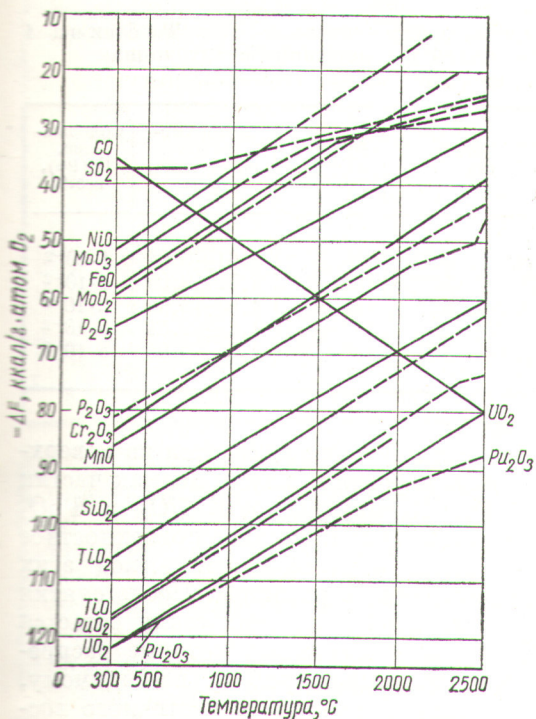


Рис. 1. Зависимость свободной энергии образования окислов некоторых элементов от температуры.

Основное достоинство термического метода состоит в том, что сталь в случае незначительного захвата урана и плутония может быть захоронена без дополнительной переработки. В связи с этим требовалось изучить взаимодействие окисного топлива с расплавами сталей при нагревании.

Взаимодействие окислов урана и плутония с расплавами сталей и поверхностные явления в этих системах изучали методом лежащей капли. Для исследования использовали таблетки UO_2 , PuO_2 , $UO_2 + PuO_2$ и некоторые сплавы железа. Торцовые поверхности таблеток шлифовали. Опыты проводили в электропечи сопротивления с молибденовым нагревателем в среде аргона и в вакууме. После расплавления металлического образца давали 30-минутную выдержку при заданной температуре и фотографировали изображение капли сплава и таблетки. Из опытных данных рассчитывали величину поверхностного натяжения расплавленных сталей по методу Башфорта и Адамса [2], усовершенствованному Кошевику [3]. Затвердевший сплав отделяли от окисной таблетки и в нем определяли содержание урана и плутония.

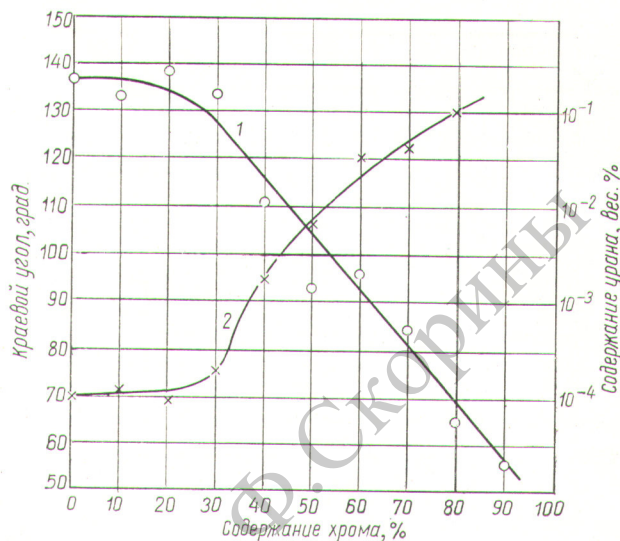


Рис. 2. Зависимость краевых углов смачивания (кривая 1) и содержания урана (кривая 2) в сплаве Fe — Cr от состава сплава.

Результаты опытов представлены на рис. 2—4 и в табл. 1. Как видно из рис. 2, расплавленное железо не смачивает UO_2 (краевой угол равен 136°) и практически не взаимодействует с ней (содержание урана $1 \cdot 10^{-4}\%$). Добавление к железу хрома до 30% (см. рис. 2) и никеля до 50% (см. рис. 3) не оказывает большого влияния на величину краевого угла и на содержание урана в сплаве, но при больших добавках хрома и никеля краевые углы уменьшаются

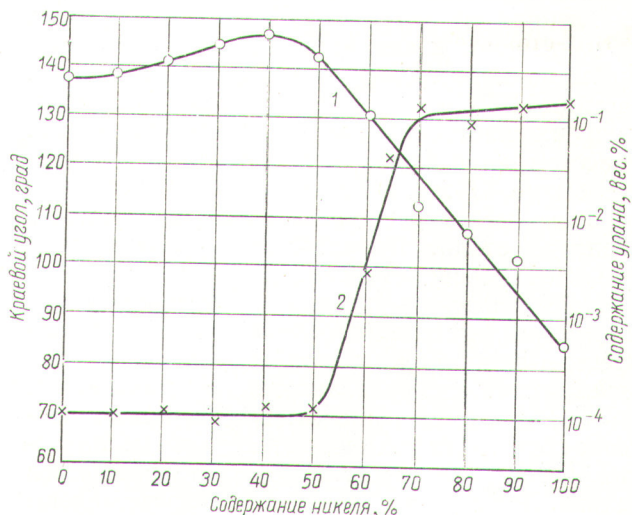


Рис. 3. Зависимость краевых углов смачивания (кривая 1) и содержания урана (кривая 2) в сплаве Fe — Ni от состава сплава.

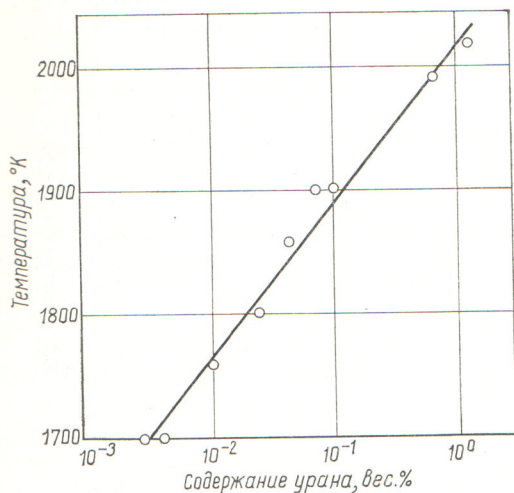


Рис. 4. Содержание урана в стали X16H16M2B в зависимости от температуры.

и содержание урана в сплаве увеличивается на 2—3 порядка. Характерно, что увеличение смачиваемости сопровождается увеличением содержания урана в сплавах. Из данных табл. 1 видно, что UO_2 не смачивается нержавеющими сталями, при этом содержание урана в сплаве составляет $1 \cdot 10^{-2}$ — $5 \cdot 10^{-2}$ %. На рис. 4 показана зависимость содержания урана в стали X16H16M2B от температуры обработки. Видно, что с ростом температуры содержание урана в стали увеличивается и при температуре 2015° К достигает 1%.

Величина поверхностного натяжения расплавленной стали (1,34—1,75 н/м) при условии несмачиваемости является достаточно высокой, чтобы на поверхности расплава удерживались частицы UO_2 и PuO_2 определенного размера, хотя их плотность больше плотности стали. Расчетом определено, что таблетки UO_2 диаметром до 11 мм и частицы PuO_2 диаметром до 5 мм могут удерживаться на поверхности расплава стали. Правильность расчетов подтверждена экспериментально.

Чтобы выяснить механизм перехода урана и плутония в сталь, определяли характер распределения их в слитках стали. Для этого слитки обрабатывали несколькими порциями смеси азотной и соляной кислот. В полученных растворах определяли количества урана и плутония, которые относили к весу растворившегося сплава. Результаты определений представлены в табл. 2, из которой видно, что уран и плутоний в слитках стали распределены неравномерно. Основная масса (до 99%) содержащихся

Таблица 1
Краевые углы, поверхностное натяжение сталей и содержание в них урана или плутония (температура 1673—1723° К)

Горючее	Марки сталей	Краевой угол, град	Поверхностное натяжение, н/м	Содержание, U (Pu), вес.%
UO_2	X16H15M3B	130 ± 5	$1,61 \pm 0,04$	$1 \cdot 10^{-2}$
UO_2	X16H16M2B	136 ± 5	$1,75 \pm 0,05$	$1 \cdot 10^{-2}$
UO_2	X13C2M2Г	145 ± 5	$1,61 \pm 0,04$	$2 \cdot 10^{-2}$
UO_2	X18H10T	$108 \pm 0,5$	$1,74 \pm 0,04$	$5 \cdot 10^{-2}$
PuO_2	X16H16M2B	101 ± 2	$1,34 \pm 0,05$	$8 \cdot 10^{-3}$

в стали урана и плутония находится на поверхности слитков, вероятно, в виде мелких частиц UO_2 и PuO_2 . Несмачиваемость UO_2 и PuO_2 расплавленной стали и высокое поверхностное натяжение стали обуславливают выход этих частиц на поверхность расплава. После снятия поверхностного слоя в слитках стали остается 0,1—1,7% урана и плутония, которые распределены довольно равномерно и, по-видимому, перешли в сталь в результате частичного восстановления двуокисей.

Из данных табл. 2 видно также, что время взаимодействия UO_2 с расплавами сталей в пределах 1—840 мин не оказывает заметного влияния на количество урана, переходящего в расплавленную сталь.

Следовало учесть, что накопление в горючем продуктов деления может изменить взаимодействие и смачиваемость в исследуемых системах. Для выяснения этого проводили исследования с имитаторами, в качестве которых служили спеченные брикеты UO_2 с добавками цезия, бария, стронция, иттрия, лантана, неодима, празеодима, самария, церия, молибдена, ниобия, циркония. Добавки соответствовали 5-, 10-, 15- и 20%-ному выгоранию горючего. Подобные смеси, имитирующие UO_2 с выгоранием 2—10%, применяли [4] для изучения некоторых свойств окисного горючего.

Результаты опытов по изучению взаимодействия имитаторов облученного горючего с расплавленной сталью приведены в табл. 3. Из данных этой таблицы видно, что при введении в UO_2 добавок, имитирующих продукты деления, заметного увеличения перехода урана в сталь не происходит. Смачиваемость UO_2 сталью, содержащей добавки, увеличивается, хотя и незначительно.

Термический процесс вскрытия проверен на необлученных окисных твэлах стержневого ти-

Распределение урана и плутония в слитках стали Х16Н16М2Б

Таблица 2

Горючее	Условия опыта		Среднее содержание U(Pu) в слитке, вес. %	Наружный слой		Промежуточный слой		Внутренний слой	
	Температура, °К	Время выдержки, мин		Глубина от поверхности, мм	Содержание U(Pu), % к общему количеству в слитке	Глубина от поверхности, мм	Содержание U(Pu), % к общему количеству в слитке	Глубина от поверхности, мм	Содержание U(Pu), % к общему количеству в слитке
UO ₂	1630	3	2·10 ⁻²	0—0,010	98,7	0,010—0,02	0,5	0,2—2,0	0,8
UO ₂	1670	10	3·10 ⁻²	0—0,003	99,5	0,003—0,60	0,3	0,6—3,0	0,2
UO ₂	1720	10	6·10 ⁻³	0—0,001	98,1	0,001—0,60	1,4	0,6—1,6	0,5
UO ₂	1720	30	1·10 ⁻²	0—0,080	99,6	0,08—1,00	0,3	1,0—2,0	0,1
UO ₂	1720	840	1·10 ⁻²	0—0,001	98,3	0,001—1,00	1,5	1,0—2,0	0,2
PuO ₂	1720	10	5·10 ⁻²	0—0,160	99,9	0,160—0,32	< 0,1	0,3—2,5	< 0,1
PuO ₂	1730	30	4·10 ⁻³	0—0,160	99,9	0,160—0,34	< 0,1	0,3—2,0	< 0,1
UO ₂ +PuO ₂	1720	30	7·10 ⁻³	0—0,040	99,3	0,04—0,20	0,1	0,2—2,0	0,6

па с оболочками из нержавеющей стали и дисперсионного типа с матрицами из нержавеющей стали. Оболочки твэлов стержневого типа были заполнены либо спеченными брикетками UO₂ диаметром 5 мм, либо раздробленными брикетками и порошком. Твэлы дисперсионного типа состояли из частиц UO₂ размером до 50 мк в матрице из нержавеющей стали.

Вскрытие твэлов осуществлялось в электропечах сопротивления и индукционных печах в среде аргона и в вакууме 13,33—1,33 н/м² при температуре 1670—1770° К в тиглях из окислов магния, бериллия или урана. Изучалось влияние температуры и времени на полноту вскрытия твэлов, на потери урана со сталью и с возгоняющимися продуктами.

Твэлы стержневого типа полностью вскрываются при температуре 1670—1720° К в течение 1—2 мин. В результате вскрытия стержневых твэлов, как и предполагалось, получены слитки стали, на поверхности которых располагались брикеты горючего. Брикетки сохранили первоначальную форму, размеры, цвет и плотность. Порошок UO₂ в процессе нагревания и оплавления оболочки спекался в сравни-

тельно прочные стержни диаметром 4—4,5 мм и длиной 10—30 мм с плотностью 8—8,5 г/см³. Брикетки легко отделялись от слитка стали. Внешний вид брикетов и стержней топлива после вскрытия твэлов показан на рис. 5.

Вскрытие твэлов дисперсионного типа происходит при температуре 1720—1770° К в течение 20—60 мин. В процессе вскрытия металл оболочки и матрицы расплавляется, выходит на поверхность сердечника в виде капель и стекает на дно тигля. Одновременно происходит объединение и спекание мелких частиц UO₂ в крупные механически прочные столбики.

Количество урана, захватываемого сталью в процессе вскрытия твэлов при температуре до 1770° К, не превышало 5·10⁻²%. Унос урана с возгоняющимися продуктами при температуре 1720° К был также невелик и составлял 6·10⁻³%.

В результате термического вскрытия окисных твэлов со стальными оболочками получается смесь расплавленной стали и частиц твердого горючего. Чтобы практически использовать термический метод для подготовки твэлов к регенерации, требовалось разделить горючее и рас-

Влияние добавок имитаторов продуктов деления на процесс взаимодействия и смачиваемость в системе горючее — расплавленная сталь Х16Н16М2Б при температуре 1720° К

Таблица 3

Условное содержание, %	Содержание урана в стали, вес. %	Краевой угол смачивания, град
—	1,6·10 ⁻³	136±3
5	7,4·10 ⁻³	119±2
10	5,4·10 ⁻³	128±2
15	3,0·10 ⁻³	128±2
20	1,1·10 ⁻³	128±2

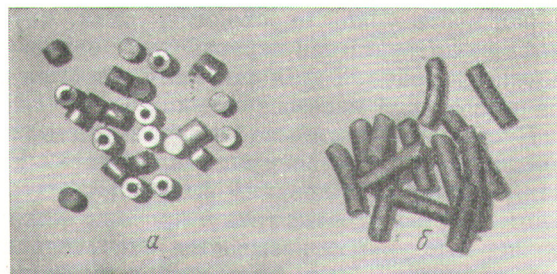


Рис. 5. Внешний вид горючего после расплавления оболочек твэлов, заполненных:

а — спеченными брикетками; б — порошком.

плавленную сталь. С этой целью исследовали процессы и испытывали установки, позволяющие практически решить задачу подготовки горючего и при этом обеспечить возможность дистанционного управления процессом в простой надежной ядернобезопасной аппаратуре, высокую производительность, небольшие потери делящихся материалов, минимальный объем отходов в удобной для хранения форме.

Фазовое различие, несмачиваемость горючего расплавленной сталью, спекаемость мелких частиц горючего в конгломераты, способность этих частиц выходить на поверхность расплавленной стали позволили отделить горючее от стали фильтрованием ее в расплавленном состоянии. По данному методу сборка твэлов нагревалась в электропечи до температуры 1670—1720° К, стальные детали сборки расплавились. Сталь вместе с горючим собиралась в тигле, имеющем в дне отверстия размером 3—5 мм, которые вначале были перекрыты. Производилось 15-минутное отстаивание, при этом мелкие частицы топлива оставались на поверхности стали, а более крупные тонули, образуя на дне тигля фильтрующий слой, который не препятствовал вытеканию стали, но задерживал горючее. Разделение горючего и стали по данному методу происходило достаточно полно; с горючим оставалось менее 0,5% стали, а в стали содержалось менее 0,05% урана.

В результате термического вскрытия сборок твэлов и разделения продуктов получаются горючее в виде брикетов двуокиси и сталь в виде слитка или гранул. Кроме того, в процессе вскрытия твэлов происходит выделение из горючего в газовую фазу некоторых летучих продуктов деления, главным образом благородных газов.

Термический метод с достаточно большой производительностью позволяет дистанционно обрабатывать сборки твэлов полностью или по частям без предварительной выдержки (используя тепло радиоактивного распада); с небольшими потерями отделить сталь от UO_2 и PuO_2 ; получить незначительное количество отходов в форме, удобной для захоронения; избежать пылящей фракции в результате спекания мелких частиц горючего до оплавления оболочки.

Поступила в Редакцию 22/V 1968 г.
В окончательной редакции 25/X 1968 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. Х. Кеннет. Англ. патент № 977566, 1963.
2. F. Bashfort, J. Adams. Cambridge University Press, London, 1883.
3. Ю. А. Кошевник, И. М. Кусakov. «Ж. физ. химии», 27, 1887 (1953).
4. S. Strausberg, E. Murbach. J. Engng Chem. Proc. Developm., 2, No. 3, 228 (1963).

Исследование причин неполного извлечения урана из гранулированного фторидного шлака

М. С. ГУСАРОВ, Н. П. НЕКРАСОВА, Е. Н. ОБЛОМЕЕВ

УДК 669.822.3:661.879

В основу производства необогащенного урана положены процессы металлотермического восстановления его тетрафторида металлическим кальцием или магнием [1]. При этом некоторая часть урана переходит в шлак, который позднее подвергается переработке с целью доизвлечения урана. Такая операция является весьма трудоемкой и несовершенной.

В связи с этим была предпринята попытка ввести операцию грануляции шлаков. Но из дальнейшего исследования выяснилось, что при химической обработке гранулированных шлаков извлечение урана оказывается значительно более низким. Это, по-видимому, происходит за счет изменения химического состояния урана, находящегося в шлаке во время его грануляции.

Для выяснения влияния грануляции шлака на его химический состав использовали шлак от лабораторных опытов кальциетермического восстановления тетрафторида урана. После восстановления шлак отстаивали 20 сек и из реакционного тигля сливали примерно 90% всего количества. Половину слитого расплавленного шлака охлаждали до затвердевания, а половину с температурой 1500° С подвергали грануляции сливом в воду или в водные растворы, объем которых в 50—80 раз превышал объем шлака. Гранулированный шлак застывал в виде округлых, хрупких и полых частичек с диаметром 1—6 мм, имеющих молочную окраску. Химический состав затвердевшего (компактного) и гранулированного шлака приведен в таблице.