

## Взаимодействие и смачиваемость в системе двуокись урана — расплавы на основе циркония

А. Т. АГЕЕНКОВ, С. Е. БИБИКОВ, Г. П. НОВОСЕЛОВ, В. Ф. САВЕЛЬЕВ

УДК 621.039.54

Термическое вскрытие твэлов с окисным горючим путем оплавления стальных оболочек [1] целесообразно применять и для твэлов, имеющих циркониевые оболочки. Однако попытки непосредственно оплавить оболочки из циркония пока не привели к желаемому результату вследствие того, что при температуре плавления циркония (1860° С) и выше происходит интенсивное взаимодействие двуокиси урана с расплавом. Вместе с тем эвтектические сплавы циркония с такими металлами, как Ве, Fe, Ni, Cu, Cr и др., имеют значительно более низкую температуру плавления (930—1300° С) [2].

Сплавление циркония с металлами и взаимодействие расплавов с UO<sub>2</sub> осуществлялись в индукционной вакуумной печи в тиглях из прозрачного кварца. Температура измерялась оптическим пирометром. При изучении смачиваемости двуокиси урана расплавами использовался метод лежащей капли. Опыты проводились в печи сопротивления в вакууме 5·10<sup>-3</sup> мм рт. ст.

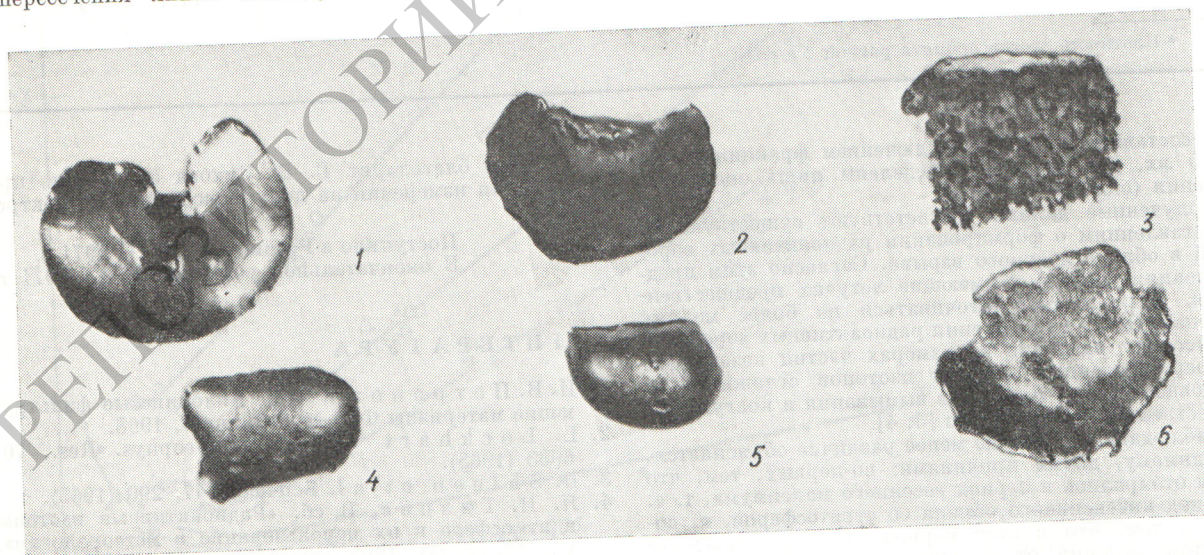
### Переход урана в расплав и краевые углы смачивания (время выдержки 30 мин)

Номер образца	Присадка	Содержание присадки в сплаве, вес. %	Температура опыта, °С	Переход урана в сплав, вес. %	Краевой угол смачивания, град
2	Железо	14,1	1250	0,12	68±5
3	»	19,2	1250	0,18	75±5
7	Никель	20,2	1300	1,92	44±4
8	»	30,3	1300	2,20	37±5
9	Медь	20,0	1200	0,48	62±5
12	Сталь X18H10T	4,9	1300	0,92	71±5

В связи с этим изучались условия процесса сплавления циркония с некоторыми металлами, а также смачивание и взаимодействие в системе металлический расплав — твердая двуокись урана. Материал присадки должен удовлетворять следующим условиям: сплавляться с циркониевой оболочкой при невысокой температуре, иметь меньшее, чем цирконий, сродство с кислородом, быть малолетучим, доступным и сравнительно дешевым. По данным признакам для исследования были выбраны медь, железо, никель, нержавеющая сталь. Железо с цирконием образует две эвтектики [при 934° С (16% Fe) и при 1330° С (84% Fe)] и интерметаллид Fe<sub>2</sub>Zr (1600° С) [2]. Сплавы циркония, содержащие более 15% меди, при температурах выше 1300° С находятся в жидком состоянии [3]. Никель с цирконием образует две эвтектики [при 960° С (15% Ni) и 1340° С (84% Ni)] и интерметаллид Ni<sub>3</sub>Zr (1700° С) [4].

При нагревании образцов циркония с металлами во всех опытах жидкая фаза образовывалась в результате контактного плавления. Наиболее быстро (в течение 10—20 сек) происходит сплавление циркония с медью, что можно объяснить отсутствием тугоплавких соединений в этой системе. При температуре ниже 1300° С образцы, содержащие 11—30% железа, 12—30% нике-

В опытах использовались подвидный цирконий, сплав циркония с 1% ниобия, железо (сталь Ст.3), медь марки М1, никель марки Н1 и нержавеющая сталь X18H10T. Изучались условия сплавления циркония с данными металлами в интервале составов, ограниченных точками пересечения линий ликвидус с изотермой 1300° С.



Внешний вид сплавов с присадками:

1 — 10% Si; 2 — 20,2% Ni; 3 — 30,1% Ni; 4 — 49,2% Fe; 5 — 29,4% Fe; 6 — 46,3% Cu.

ок. 5—20% нержавеющей стали (см. рисунок), полноты расплавляются.

Полученные сплавы циркония обладают высокой пластичностью, низким поверхностным натяжением, поэтому они растекаются по дну тигля.

Сплавы циркония в различной степени смачивают поверхность урана. Наибольший краевой угол смачивания имеют сплавы цирконий — железо [(68 ± 75) ± 5 градуса] (см. таблицу). При температуре 1250—1300 °С наблюдается незначительное взаимодействие циркония, находящегося в расплаве, с твердой двуокисью урана:  $Zr + UO_2 = ZrO_2 + U$ . Восстановленный уран растворяется в расплаве. Наибольшее количество урана переходит в сплавы циркония с никелем (2,2%), нержавеющей сталью (0,92%), наименьшее — в сплавы с вольфрамом (0,18%) и медью (0,48%).

Таким образом, экспериментально установлены условия смачивания циркония с некоторыми металлами при температуре до 1300 °С. Показано отсутствие значи-

тельного взаимодействия и смачиваемости двуокиси урана расплавами циркония с присадками. Полученные данные позволяют приступить к исследованию термического вскрытия твэлов с циркониевой оболочкой оплавлением ее в присутствии металлических присадок.

Авторы выражают благодарность Н. А. Нилову за интерес и помощь в работе, а также Е. М. Валуеву и Э. В. Комарову за помощь в выполнении экспериментов.

Поступило в Редакцию 12/VIII 1971 г.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Г. П. Новоселов, А. Т. Агеев. «Атомная энергия», 16, 230 (1969).
2. E. Hayes et al. Trans. ASM, 43, 888 (1954).
3. C. Lundin et al. J. Metals, 5, 273 (1953).
4. Б. Ластмен, Ф. Керз. Металлургия циркония. М., Изд-во иностр. лит., 1959.

## Рентгенофлуоресцентный анализ тяжелых элементов методом $\alpha X$ -совпадений

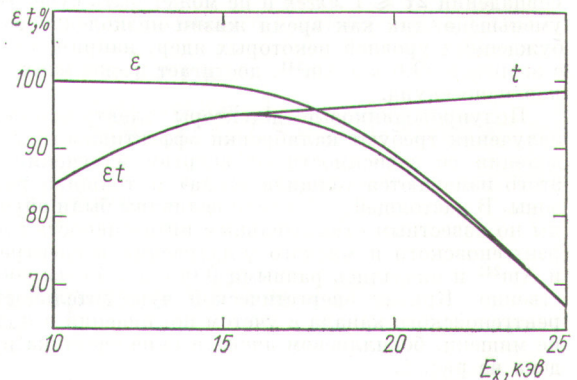
Б. М. АЛЕКСАНДРОВ, С. М. СОЛОВЬЕВ, Л. И. ТЫВИН, В. П. ЭЙСМОНТ

УДК 543.53

Одним из важных методов радиоизотопного анализа тяжелых элементов является  $\alpha$ -спектрометрия. В настоящее время известно около 1000  $\alpha$ -линий 40 естественных и 200 искусственных  $\alpha$ -излучателей [1]. Однако более 90% этих линий сосредоточено в узком энергетическом интервале (4,5—8,0 Мэв). Естественно поэтому, что  $\alpha$ -линии многих элементов оказываются очень близкими друг к другу и не могут быть разрешены применяемыми для изотопного анализа полупроводниковыми  $\alpha$ -спектрометрами, лучшие образцы которых имеют разрешение 10—15 кэв. Причем получить такое разрешение можно лишь с очень тонкими источниками.

Метод  $\alpha$ -,  $\gamma$ -совпадений в некоторых случаях оказывается малоэффективным, например для четно-четных ядер. Воим им свойственна ротационная природа низколежащих (наиболее интенсивно заселяемых) уровней возбуждения, энергии которых мало отличаются от ядра к ядру. Кроме того, переходы с этих уровней сильно конвертированы (коэффициент внутренней конверсии ~1000), так что на  $\gamma$ -излучение приходится очень малая доля. Однако в результате внутренней конверсии возникает интенсивное рентгеновское  $L$ -излучение с выходом порядка 0,4 кванта на  $\alpha$ -распад. На крайней энергетической границе флуоресцентности  $L$ -излучения, полученного ионизационными методами, имеются три боковых пика  $L\alpha$ ,  $L\beta$  и  $L\gamma$ , энергии которых монотонно увеличиваются с ростом заряда ядра  $Z$ , скачком при  $\Delta Z = 1$  примерно на 300, 500 и 700 эв соответственно [2]. Этого сдвига оказывается достаточно для четкого разделения соседних по  $Z$  элементов. Поэтому для измерения спектров использовать можно полупроводниковые Si (Li)- или Ge (Li)-спектрометры, энергетическое разрешение которых составляет несколько сот электронвольт. Ограничение рентгенофлуоресцентного метода, связанное с трудностью его использования для анализа изотопов одного и того же элемента, оказывается несущественным, так как чаще всего в силу известных закономерностей  $\alpha$ -распада совпадают  $\alpha$ -спектры ядер, отличающихся по  $A$  и  $Z$ . Например, оказываются близкими линии  $Pu^{238}$

(5499 кэв, 74%), 5456 кэв, 29%) и  $Am^{241}$  (5486 кэв, 86%; 5443 кэв, 13%); а также  $Cm^{242}$  (6112 кэв, 74%; 6068 кэв, 26%) и  $Cf^{252}$  (6118 кэв, 84%); 6075 кэв, 16%) \*. Кроме того, при отсутствии энергетических сдвигов  $L$ -излучения ( $\gamma$  изотопов одного элемента) возможен анализ по числу квантов  $L$ -излучения на акт распада, которое может быть различным для различных изотопов. Эти соображения и привели к разработке метода  $\alpha X$ -совпадений для анализа тяжелых элементов.



Р и с. 1. Зависимость чувствительности  $et$  спектрометра от энергии излучения ( $\epsilon$  — эффективность,  $t$  — проницаемость).

Для измерения энергетических распределений  $\alpha$ -частиц и рентгеновских квантов используются соответственно поверхностно-барьерный Si (Au)- и диффузионно-дрейфовый Si (Li)-детекторы. Они заключены в одну

\* В процентах указаны относительные интенсивности линий.