

4. Чалов П. И. «Атомная энергия», 1969, т. 27, с. 26; «Изв. АН КиргССР», 1970, № 5, с. 13.
 5. Шуколюков Ю. А. Деление ядер урана в природе. М., Атомиздат, 1970.
 6. Чердынцев В. В. и др. «Геохимия», 1968, № 4, с. 3; 1969, № 4, с. 7.
 7. Чердынцев В. В., Кадыров Н. Б., Новичкова Н. В. «Геохимия», 1970, № 3, с. 16.
 8. Neuilly M. e. a. Compt. Rend. de l'Acad. Sci., Paris, 1972, v. 275, D-1847; Bodu R. e. a. Ibid., D-1731 (см. переводы в сб. «Атомная техника за рубежом», 1973, № 6, с. 6—9).
 9. Hoffman D. e. a. Nature, 1971, v. 243, p. 19.

10. Kuroda P. J. Chem. Phys., 1956, v. 25, p. 781.
 11. Прасолов Р. С. В сб.: Тепло- и массоперенос. Минск, «Наука», 1972; т. 2, ч. 2, с. 540.
 12. Сборник: Физика ядерных реакторов. М., Атомиздат, 1964.
 13. Гордеев И. В., Кардашев Д. А., Малышев А. В. Ядерно-физические константы. М., Госатомиздат, 1963.
 14. Сиборг Г. В сб.: Очерки современной геохимии и аналитической химии. М., «Наука», 1972, с. 560.
 15. Чердынцев В. В. «Геохимия», 1960, № 4, с. 373.
 16. Хайд Э., Перлман И., Сиборг Г. Трансурановые элементы. М., Атомиздат, 1967.

Теплопроводность двуокиси урана

КОЛЯДИН В. И., ИЛЬИН Э. П., ХАРЛАМОВ А. Г., ЯКОВЛЕВ В. В.

УДК 536.21:546.791

Теплопроводность двуокиси урана относится к структурно-чувствительным свойствам, зависящим от ряда факторов: температуры, плотности, стехиометрического состава, технологии изготовления, выгорания и т. д. Это обстоятельство и является причиной расхождения результатов измерений, проведенных различными авторами (особенно в области температур выше 2000° К). Поэтому для получения достоверной информации по теплопроводности двуокиси урана, изготовленной по какой-либо конкретной технологии, необходимы дальнейшие экспериментальные исследования.

В соответствии с теорией переноса тепла в двуокиси урана может осуществляться благодаря фононной, электронной (включая амбиполярную диффузию электронов и дырок) и лучистой составляющим. Суммарная теплопроводность имеет вид [1]

$$\chi = \chi_{\text{ф}} + \chi_{\text{э}} + \chi_{\text{луч}} \quad (1)$$

Вклад составляющих зависит от температуры. Теплопроводность двуокиси урана, обусловленная фононной составляющей, выражается отношением

$$\chi_{\text{ф}} = \frac{1}{A + BT} \quad (2)$$

где коэффициенты A и B определяются эмпирически по результатам эксперимента.

При температурах свыше 1500° К двуокись урана по своим свойствам становится полупроводником, кроме того, в ней могут происходить сложные структурные преобразования (рост зерен, образование столбчатой структуры). В области высоких температур существенную роль в процессе переноса тепла могут играть внутреннее излучение и диффузия носителей заряда. Лучистая составляющая определяется из уравнения

$$\chi_{\text{луч}} = \frac{16kn^2T^3}{3\alpha} \quad (3)$$

а вклад в теплопроводность двуокиси урана от полупроводникового механизма диффузии носителей заряда оценивается модифицированным выражением закона Видемана — Франца:

$$\chi_{\text{э}} = 2T \frac{k^2}{e^2} \sigma \left[1 + \frac{2\sigma_1\sigma_2}{\sigma^2} \left(2 + \frac{E_a}{2kT} \right)^2 \right], \quad (4)$$

где e — элементарный заряд; σ — суммарная электропроводность; σ_1 , σ_2 — электропроводность электронов и дырок; E_a — энергия активации; α — коэффициент

поглощения; n — коэффициент преломления; k — постоянная Стефана — Больцмана; T — температура, °К.

Для рассмотрения были выбраны результаты экспериментальных работ, в которых исследовались образцы спеченной поликристаллической двуокиси урана стехиометрического состава ($0 < U = 2,00$). Данные по теплопроводности двуокиси урана [2] — [14] были предварительно скорректированы на 95%-ную теоретическую плотность. При усреднении значений по аналогии с выражением (1) предполагали, что $\chi_{\text{э}} \sim T$, а коэффициент поглощения α является экспоненциальной функцией температуры. Это привело к единой аналитической зависимости (рис. 1, кривая 1).

$$\chi(T) = (3,77 + 0,0258T)^{-1} + 1,1 \times 10^{-6}T + 1,01 \cdot 10^{-13}T^3 \exp 7,2 \cdot 10^{-4}T. \quad (5)$$

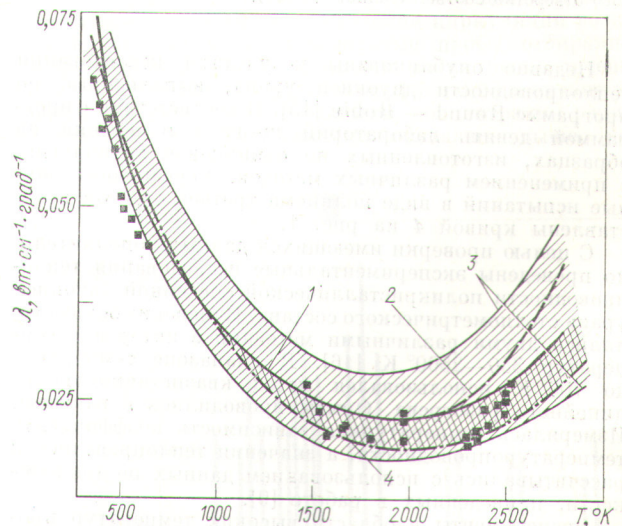
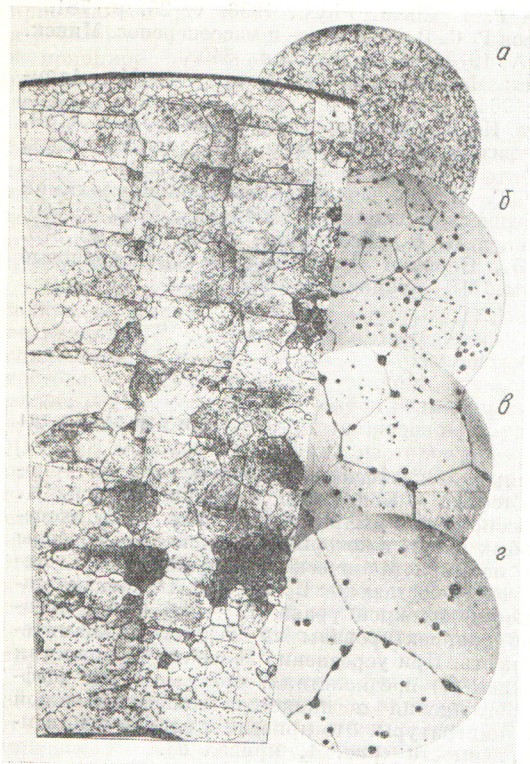


Рис. 1. Зависимость теплопроводности поликристаллической двуокиси урана от температуры:

1 — рекомендуемые значения по уравнению (5); 2 — возможная зависимость по работам [8, 12]; 3 — область разброса экспериментальных данных; 4 — усредненные значения по программе Round — Robin [15]; $\lambda = 0,115 - 1,14 \cdot 10^{-4}T + 4,4 \cdot 10^{-8}T^2 - 5 \cdot 10^{-12}T^3$; ■ — результаты настоящей работы.



Р и с. 2. Микроструктура образца (травлен, $\times 40$):
 а — до испытания ($\times 340$); б — г — после испытания (у
 наружной поверхности, в центральной области и у осе-
 вого отверстия соответственно, $\times 340$).

Недавно опубликованы результаты исследования теплопроводности двуокиси урана, выполненные по программе Round — Robin [15]. В соответствии с программой девять лабораторий провели измерения на образцах, изготовленных по одинаковой технологии, с применением различных методов. Усредненные данные испытаний в виде полинома третьей степени представлены кривой 4 на рис. 1.

С целью проверки имеющихся данных дополнительно проведены экспериментальные исследования теплопроводности поликристаллической спеченной двуокиси урана стехиометрического состава. Измерения осуществлялись двумя различными методами в интервале температур 350—2500° К [16]. В диапазоне температур до 700° К использовался метод квазистационарного линейного разогрева. Опыты проводились в вакууме. Измерялась температурная зависимость коэффициента температуропроводности, а значения теплопроводности рассчитывались с использованием данных по теплоемкости, приведенных в работе [9].

Эксперименты в области высоких температур проводились на образцах цилиндрической формы с применением стационарного метода радиального теплового потока в среде очищенного аргона. Этот метод основан на известном решении уравнения теплопроводности

Фурье. С помощью оптического микропирометра определяли температуру в соответствующих радиальных сверлениях в образце, имитирующих модель черного тела. Отношение полной высоты сборки образцов к наружному диаметру было больше десяти. Для предотвращения разрушения образцов от термических напряжений служили два нагревателя, одним из которых задавался общий уровень температуры, другим — перепад по радиусу образцов в пределах приблизительно 30—100° С. Тепловой поток, необходимый для расчета теплопроводности, определяли по величине тока и падению напряжения на рабочем участке внутреннего нагревателя. Исследуемые образцы имели форму таблеток с наружным диаметром 18 мм и высотой 6 мм, плотность составляла 95,5—97,7% теоретической. Относительная максимальная погрешность единичного измерения теплопроводности в опытах с методикой линейного разогрева составляла 8%, для стационарного метода радиального теплового потока — (15 ÷ 25)%.

Результаты измерений теплопроводности в сравнении с аналогичными данными других исследователей приведены на рис. 1. Можно ожидать, что значения теплопроводности двуокиси урана, заключенные между зависимостями 1 и 4 представляют область наиболее достоверных данных. Результаты настоящих измерений с точностью $\pm 10\%$ укладываются в интервале этих значений.

В результате микроструктурных исследований образцов после тепловых испытаний был выявлен значительный рост размеров зерен — приблизительно до 200 мкм по сравнению с исходными, равными ~6 мкм (рис. 2).

Результаты эксперимента в области температур выше 2000° К подтверждает рост теплопроводности двуокиси урана, отмеченный в ряде работ. Это явление обычно связывают с увеличением прозрачности крупнозернистой керамики или с интенсификацией процесса диффузии носителей заряда.

Поступило в Редакцию 7/III 1973 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Thermal Conductivity of Uranium Dioxide. Report. 59, Vienna, IAEA, 1966.
2. Reiswig R. J. Amer. Ceram. Soc., 1961, v. 44, p. 48.
3. Daniel J. e. a. Report HW-69945, 1962.
4. Feith A. Report TM-63-9-5, 1963.
5. Vogt J. e. a. Report RMB-527, 1964.
6. Godfrey T. e. a. Report ORNL-3556, 1964.
7. Stora T. e. a. Report CEA-R-2586, 1964.
8. Nishijima A. e. a. J. Amer. Ceram. Soc., 1965, v. 48, p. 31.
9. Wheeler M. Brit. J. Appl. Phys., 1965, v. 16, p. 365.
10. Ainsough J., Wheeler M. Brit. J. Appl. Phys., 1968, v. 7, p. 859.
11. Asamoto R. e. a. J. Nucl. Materials, 1969, v. 29, p. 67.
12. Van Graeynest e. a. Report CEA-R-3764, 1969.
13. Schmidt H. High Temperatures — High Pressures, 1969, v. 1, p. 309.
14. Walter A. e. a. Rev. Internat. Hautes Temperatures et Refract., 1970, v. 7, p. 271.
15. Müller E. Atomwirtsch.— Atomtechn., 1972, v. 17, p. 37.
16. Колядин В. И. и др. Препринт ИАЭ-2227, М., 1972.