

К вопросу о распухании высокотемпературного окисного горючего

И. Г. ЛЕВЕДЕВ, В. И. КУЗЬМИН, А. С. ПИСКУН

УДК 621.039.542.342

Поведение осколков деления в окисном горючем для быстрых реакторов имеет ряд особенностей, связанных с глубоким выгоранием, высокими температурами топлива, высокими температурными градиентами. Для этих условий долгоживущие и стабильные осколки деления по их поведению в окисном горючем можно разделить на четыре группы: твердые растворимые, твердые нерастворимые, летучие и газообразные.

Атомы каждой из этих групп осколков деления занимают некоторый объем в горючем и в соответствии с их выходом, размером и термодинамическим состоянием вносят вклад в изменение объема горючего. В работах [1, 2] определены осколки деления, которые не растворяются в окисном горючем, образуя выделения (Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ba, Sr), и те, которые находятся в растворенном состоянии в горючем (Zr, Ce, La и другие редкоземельные элементы).

Ранее сообщалось [3], что средняя скорость распухания окисного горючего, обусловленная накоплением всех осколков деления, составила ~1% на 1% выгорания. В данной работе сделана оценка вклада каждой из перечисленных групп осколков деления в распухание окисного горючего при температурах, превышающих 800° С.

Методика эксперимента. Исследования проводили на PuO₂ и UO₂. Характеристика образцов и условия облучения приведены в таблице. Выгорание в PuO₂ определяли расчетом по потоку нейтронов, а в UO₂ — масс-спектрометрическим методом. В облученных образцах методом количественной металлографии определяли объемное содержание включений, образованных нерастворимыми осколками деления, и по его величине оценивали вклад в распухание. Объемное содержание включений определяли по отношению к объему горючего без газовых пор и трещин.

Шлифы приготавливали по обычной методике: обработка на шлифовальной бумаге, полировка алмазной

пастой на шелке, смоченном глицерином, промывка керосином, сушка на воздухе. После травления в смеси H₂SO₄ + H₂O₂ число включений и их объемное содержание почти не изменялись. Приготовленные шлифы просматривали на микроскопе и фотографировали при увеличении в 400 раз. Вклад мелких включений размером менее 1 мк оценивали по электронномикроскопическим снимкам, полученным с двухступенчатых реплик. Для подсчета объемного содержания включений использовали снимки с различных участков по радиусу образца и определяли среднее значение. Вклад в распухание от растворимых осколков деления оценивали по изменению периода решетки окисного горючего. С этой целью образцы измельчали в порошок и снимали на дифрактометре АРС-11Д на медном излучении. Точность определения периода решетки составляла ±0,001 Å.

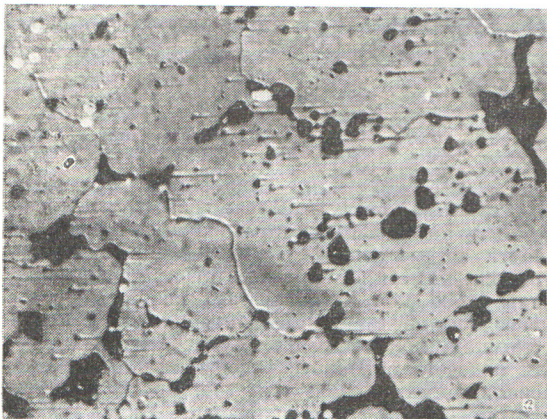
Нерастворимые осколки деления. На рисунке приведена микроструктура облученных образцов PuO₂ и UO₂ (образцы № 1 и 5). Видны включения второй фазы с характерным металлическим блеском. Включения химически устойчивы в течение нескольких дней во влажном воздухе, воде, не реагируют с HNO₃. Большая часть включений имеет округлую форму, располагается преимущественно по границам зерен и связана с порами. Размер включений возрастает по мере перехода от периферии к центру образца, т. е. от менее нагретой к более горячей части образца. Результаты определения объемного содержания включений приведены в таблице.

Из таблицы следует, что объемное содержание включений второй фазы, состоящих из нерастворимых осколков деления, отнесенное к выгоранию 1%, составляет 0,11—0,17%. Увеличение объема от нерастворимых осколков деления, которое рассчитывали, исходя из атомных объемов осколков в чистом виде с учетом их выхода, при выгорании 1% в случае их полного выделения из горючего равняется ~0,4%.

Объемное содержание включений второй фазы в облученных окисных образцах

Номер образца	Материал	Выгорание, % *	Температура поверхности, °С	$T_{\text{Ц}} \int \lambda dt, \text{ см/с.м}$ $T_{\text{ПОВ}}$	Объемное содержание включений, %	Объемное содержание включений, % на 1% выгорания
1	PuO ₂ облученная в реакторе БР-5	5,3	800	12	0,9	0,17
2	UO ₂ , 36%-ного обогащения по U ²³⁵ , облученная в реакторе СМ-2	4,6	1000	25	0,7	0,15
3	То же	7,9	1000	29	0,9	0,11
4	» »	8,2	1300	43	1,0	0,11
5	» »	9,2	1300	43	1,3	0,14

* Здесь и далее выгорание дается в процентах от тяжелых атомов.



Микроструктура окисного горючего ($\times 400$):
 а — образец двуокиси плутония; выгорание 5,3%; б — образец двуокиси урана; выгорание 9,2%.

По данным микроанализа [1, 2], существует по крайней мере два сорта включений, различающихся по составу. Большая часть включений ($\sim 96\%$ по данным работы [1]) состоит из Mo, Ru, Tc, Rh, Pd в соотношении, совпадающем с их относительным выходом на деление. Рассчитанное по измеренной плотности этих металлических включений, равной $11,34 \text{ г/см}^3$ [4], увеличение объема горючего при выгорании 1% составило 0,16%, что находится в соответствии с полученными нами результатами. Таким образом, увеличение объема горючего 0,11—0,17% на 1% выгорания обусловлено лишь частью нерастворимых осколков деления. Включения, образованные барием и стронцием, либо неотличимы при микроскопическом исследовании от горючего, либо большей частью удаляются в процессе подготовки шлифа. Как следует из расчетов, общее увеличение объема от нерастворимых осколков деления не превышает 0,4% на 1% выгорания.

Растворимые осколки деления. В работе [2] методом локального рентгеноспектрального анализа облученного образца установлено, что часть осколков деления

содержится в решетке двуокиси урана (Zr, Ce, La и другие редкоземельные элементы). Анализ изменения интенсивностей дифракционных рентгеновских линий от образцов двуокиси урана, облученных до выгорания 9%, показал, что часть осколков деления, по-видимому, редкоземельные элементы, занимает октаэдрические пустоты в решетке двуокиси урана. Изменение периода решетки при замещении атомов урана и плутония атомами осколочных элементов или при их внедрении в решетку определяет некоторую часть общего изменения объема окисного горючего при выгорании.

Ранее сообщалось [3], что период решетки двуокиси урана после выгорания 9% уменьшился на 0,2% по сравнению с исходным, а период решетки смешанного оксида ($U_{0,8}Pu_{0,2}O_2$) после выгорания 5% уменьшился на 0,06—0,01%. Это приводит к незначительному уменьшению объема горючего, которое составляет $\sim 0,05\%$ на 1% выгорания до выгорания 9%. Пока не ясно, чем вызвано уменьшение периода решетки при выгорании: накоплением осколков деления, дополнительным окислением урана или тем и другим одновременно.

Летучие и газообразные осколки деления. Состояние летучих осколков деления цезия и рубидия в окисном горючем, работающем при температуре выше 800°C , неизвестно. Вследствие высокой химической активности цезий и рубидий могут окисляться освобождаящимися при делении кислородом, однако их окислы разлагаются при такой температуре. Поэтому можно предположить, что цезий и рубидий, находясь в парообразном состоянии, накапливаются в порах горючего или, мигрируя в условиях температурного градиента, конденсируются на холодных участках оболочки и горючего. Их вклад в распухание будет проявляться как некоторая доля увеличения объема, вызванного появлением и ростом в горючем газовых пузырьков. При этом как бы увеличивается общий «эффективный» выход газообразных осколков деления и соответственно газовое распухание горючего.

Из проведенного анализа следует, что при высоких температурах суммарный вклад твердых осколков деления (Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Ba, Sr, Zr, Ce, La и других редкоземельных элементов), выход которых составляет $\sim 1,5$ атома на каждый разделившийся атом урана или плутония, в распухание окисного горючего составляет не более 0,4% на 1% выгорания. Распухание окисного горючего и твалов на его основе в значительной степени определяется газообразными осколками деления.

Поступило в Редакцию 3/VI 1969 г.

ЛИТЕРАТУРА

1. В. Bradbary et al. J. Nucl. Mater., 17, 227 (1965).
2. В. Jeffery. J. Nucl. Mater., 22, 33 (1967).
3. О. Д. Казачковский и др. Доклад на симпозиуме стран СЭВ по состоянию и перспективам работ с реакторами на быстрых нейтронах (Обнинск, 1967).
4. J. Davies et al. Trans. ANS, 9 (1), 63 (1966).