

стота колебания диффундирующих атомов, значение которой для многих металлов можно принять равным 10^{15} с^{-1} [6]. Необходимо заметить, что таким способом можно получить лишь оценочные значения энергии активации, так как используемые значения p и K_0 являются данными расчетного характера. В результате вычислений было получено, что энергия активации диффузии гелия в исследованных материалах, рассчитанная по температуре, соответствующей вторым пикам на кривых скорости выделения инертного газа, для никеля и стали 0X16H15M3B приблизительно одинакова: 45—50 ккал/(г·атом), так как температура этих пиков почти совпадает (разница в пределах разброса экспериментальных данных). Данные значения энергии активации диффузии гелия в никеле и стали совпадают с результатами работы [3]. Отметим, что энергия активации диффузии гелия в никеле соответствует энергии активации самодиффузии никеля [10], что также свидетельствует в пользу вакансионного механизма диффузии гелия в никеле при температуре 600—700 °С.

Как показали электронно-микроскопические исследования газовых пузырьков в рассматриваемых материалах, при температуре третьей стадии газовой выделении (800—900 °С) практически весь введенный гелий оказывается заклю-

ченным в пузырьках. Поэтому при температуре 900 °С и выше выделение гелия из материала может происходить лишь за счет ненаправленной миграции газовых пузырьков к поверхности образца, так как перерастворение гелия, находящегося в порах, в отсутствие нейтронного облучения маловероятно ввиду крайне низкой растворимости этого газа в металлах и сплавах.

Поступила в Редакцию 14/VI 1974 г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Glyde H., Mayne K. «Philos. Mag.» 1965, v. 12, 1965, p. 949.
2. Скоров Д. М. и др. «Атомная энергия», 1973, т. 35, вып. 4, с. 269.
3. Whitnell D., Nelson R. «Radiation Effects», 1972, v. 14, p. 249.
4. Kelly R., Matzke H. «J. Nucl. Mater.», 1966, v. 20, p. 171.
5. Ruedl E., Kelly R. Ibid., 1965, v. 16, p. 89.
6. Kelly R., Brown F. «Acta Met.», 1965, v. 13, p. 169.
7. Willertz K., Shewmon P. «Met. Trans.», 1970, v. 1, p. 2217.
8. Агапова Н. П. и др. «Изв. АН. СССР. Сер. физ.», 1974, т. 38, № 11, с. 23.
9. Farrell J. e.a. «Vacuum», 1966, v. 16, N 6, p. 295.
10. Rantanen R. e.a. «J. Vacuum Sci. Technol.», 1969, v. 7, N 1, p. 18.

УДК 621.039.343

О газовой выделении из двуокиси урана

САМСОНОВ Б. В., СИДОРОВ В. В., СПИРИДОНОВ Ю. Г., СУЛАБЕРИДЗЕ В. Ш., ЦЫКАНОВ В. А.

Характерные особенности макроструктуры поперечного сечения высоконапряженных твэлов контейнерного типа с сердечником из двуокиси урана (рис. 1) — зона равноосных зерен, зона столбчатых кристаллов, разделяющая их кольцевая трещина (в большинстве случаев) и несколько радиальных трещин — возникают после облучения вследствие ряда причин [1].

В топливе, находящемся в процессе работы при большом градиенте температур, происходит перенос массы в связи с перемещением пор в более нагретые области. При первом подъеме мощности твэла причиной этого процесса является исходная пористость топлива, при последующих — или пористость топлива в области границы между зоной столбчатых кристаллов и зоной равноосных зерен, или разделяю-

щая эти две зоны кольцевая трещина. Механизм перемещения пор заключается в испарении двуокиси урана с более нагретой стенки поры и конденсации ее на более холодной стенке. Время формирования структуры определяется теплофизическим режимом работы твэла и не превышает нескольких десятков минут. Растущие столбчатые кристаллы образуются в условиях температурного градиента, поэтому во время работы в них не должны возникать температурные напряжения. В кристаллах зоны равноосных зерен температурные напряжения создаются с появлением градиента температуры. При прекращении работы твэла в зоне равноосных зерен напряжения исчезают, а в зоне столбчатых кристаллов возникают. Под действием этих напряжений происходит отрыв зон



Рис. 1. Поперечное сечение твэла ГД-122 (после облучения)

друг от друга. При дальнейшей работе твэла процесс формирования структуры повторяется. Граница этих зон — изотерма 1700 °С.

Таким образом, выше 1700 °С двуокись образует своеобразную структуру, состоящую из плотно прилегающих друг к другу удлиненных столбчатых кристаллов, имеющих почти теоретическую плотность. Газовые продукты деления (ГПД) из таких кристаллов практически не выделяются в свободный объем, а закрепляются на их границах. В момент же переформирования структуры проходящие поры как бы вычищают из зоны столбчатых кристаллов все ГПД, накопившиеся там за время работы твэла.

Учитывая описанные изменения структуры, кинетику газовой выделения из двуокиси урана можно представить следующим образом (рис. 2). Из зоны равноосных зерен ГПД выходят путем термически активированной диффузии, усложненной наличием в кристаллической структуре двуокиси урана вакансионных пор-ловушек, которые захватывают атомы ГПД, препятствуя их выходу из топлива. Механизм этого процесса исследован в работах [2, 3]. Если в твэле отсутствует зона столбчатых кристаллов, то газовой выделение должно быть постоянным (кривая I). Газовой выделение в твэлах, имеющих только зону столбчатых кристаллов, должно скачком изменяться в момент выхода реактора на мощность и в дальнейшем оставаться постоянным (кривая II). Если в твэле присутствуют обе характерные зоны, то газовой выделение должно иметь признаки обоих крайних случаев (кривая III).

Для экспериментального подтверждения предложенной модели разработана методика прямого измерения количества выделяющихся ГПД непосредственно при облучении твэлов. Это позволило не только подтвердить в общих чертах механизм газовой выделения, но и выявить такие новые особенности этого процесса, как первоначальный всплеск газовой выделения, погло-

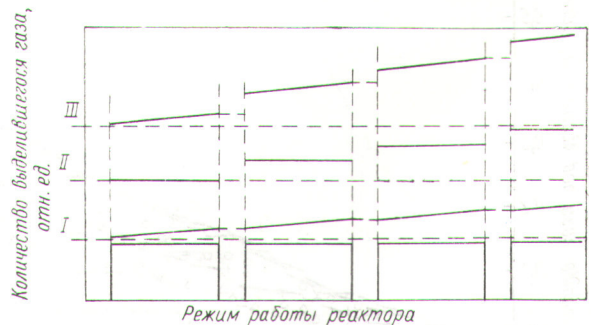


Рис. 2. Характер газовой выделения при различных структурных зонах в твэле:

I — только зона равноосных зерен; II — только зона столбчатых кристаллов; III — зона равноосных зерен и зона столбчатых кристаллов

Параметры твэлов

Таблица 1

Твэлы *	Наружный и внутренний диаметры оболочек, мм	Диаметр топливного брикета, мм	Высота столба топлива, мм	Масса двуокси урана, г	Обогащение по ^{235}U , %	Начальное заполнение твэла, ат
Д-6	6; 5,4	5,2	201	36	21	Гелий; 4
Д-7	6; 5,4	5,2	200	36	21	Гелий; 4
ГД-122	9,1; 8,2	8,15	350	182	21	Воздух; 1
ГД-125	9,1; 8,2	8,15	349	182	21	Гелий; 3,5
ГД-115	9,1; 8,2	8,15	351	182	36	Воздух; 1

* Плотность топлива для всех твэлов $\geq 10,2 \text{ г/см}^3$.

Теплофизические характеристики работы испытываемых твэлов

Таблица 2

Твэлы	Мощность твэла, кВт	Линейная тепловая мощность, Вт/см	Температура поверхности топлива, °С	Максимальная температура топлива, °С	Радиус зоны столбчатых кристаллов, см	Относительный радиус зоны столбчатых кристаллов, %
Д-6	2,6	128	1300	1600	—	—
Д-6	3,7	185	1300	1700	—	—
ГД-115	22	630	1000	1800	0,1	25
ГД-122	26	740	1000	2400	0,3	73
ГД-125	27	770	1000	2460	0,32	76

Все твэлы были снабжены устройствами, позволяющими измерять количество ГПД, выходящих из топлива, причем результаты измерения мало зависели от температуры топлива в твэле [4, 5]. Суммарная ошибка в определении количества газа во всех экспериментах составляла не более $\pm 8\%$.

щение ГПД в двуокиси урана и сорбцию ГПД при остановках реактора.

Постановка экспериментов. Кинетика газовой выделенной изучалась на двух сериях твэлов: с зоной столбчатых кристаллов (серия ГД) и без нее (серия Д).

Твэлы серии ГД облучались в водяной петле реактора СМ-2, серия Д — в ампульном канале [4] (табл. 1). Теплофизические параметры твэлов не оставались постоянными от кампании к кампании, поэтому в табл. 2 приведены характеристики наиболее типичных режимов.

Экспериментальные результаты. На рис. 3 и 4 показаны изменения количества ГПД в твэлах серии ГД и Д при различной длительности облучения. После 165 эффективных суток твэл ГД-122 был извлечен из реактора для исследования структуры его поперечного сечения (см. рис. 1).

На рис. 3 показано давление, измеренное при остановках реактора. Оно существенно ниже

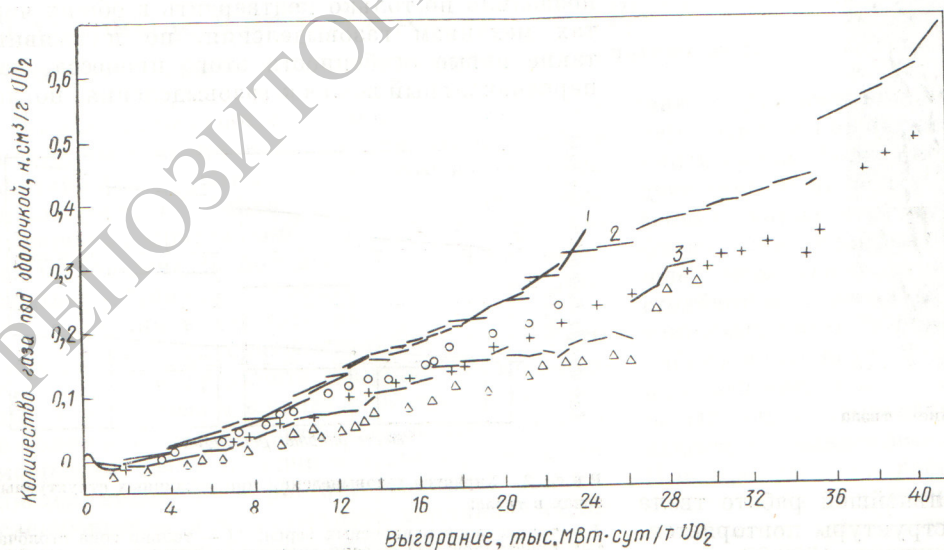


Рис. 3. Характеристика газовой выделенной в твэлах типа ГД: 1—3 — давление под оболочкой, измеренное при номинальной мощности; O, +, Δ — то же при нулевой мощности для твэлов ГД-122; 125; 115 соответственно

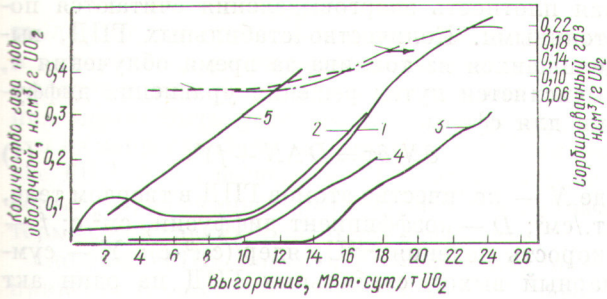


Рис. 4. Характеристика газовыделения в твэлах типа Д: 1 и 2 — давление под оболочкой, измеренное при номинальной мощности для твэлов Д-7 и 6; 3 и 4 — то же при нулевой мощности соответственно; 5 — образование ГПД в двуокиси; — — — — количество сорбированного газа в твэлах Д-7 и 6 соответственно

рабочего и не может быть объяснено только снижением температуры газов. Происходит уменьшение количества газа под оболочкой, что связано, по нашему мнению, с адсорбцией его охлажденной двуокисью урана.

Для твэлов серии ГД, имеющих зону столбчатых кристаллов, характерно скачкообразное увеличение давления ГПД под оболочкой при повышении мощности реактора после остановок (см. рис. 3). Для твэлов серии Д, не имеющих зоны столбчатых кристаллов, характерно одинаковое давление в твэле до остановки и после пуска реактора (см. рис. 4).

Обсуждение результатов. Анализ выхода ГПД из двуокиси урана в процессе ее облучения удобно проводить по обобщенной кривой кинетики газовыделения (рис. 5), на которой можно выделить участки первоначального всплеска газовыделения, слабого газовыделения и интенсивного газовыделения. Для твэлов серии ГД в этом случае используют усредненные значения выхода ГПД за кампанию.

Характерным для всех твэлов при первом повышении мощности является резкий всплеск давления (рис. 6). Продолжительность снижения давления зависит от ряда факторов, но обычно всплеск не проявляется в масштабах оси абсцисс рис. 3 и 4, так как он длится несколько часов.

Разница между давлением до и после всплеска ($\Delta P = P_{нач} - P_{кон}$) определяется в основном исходной газовой средой в твэле. Если твэл заполнен воздухом при атмосферном давлении, то по окончании всплеска в нем образуется вакуум порядка 10—20 мм рт. ст. При заполнении твэла гелием под давлением 1—3 ат ΔP оказывается меньшей, чем при заполнении воздухом. При заполнении твэла аргоном ΔP

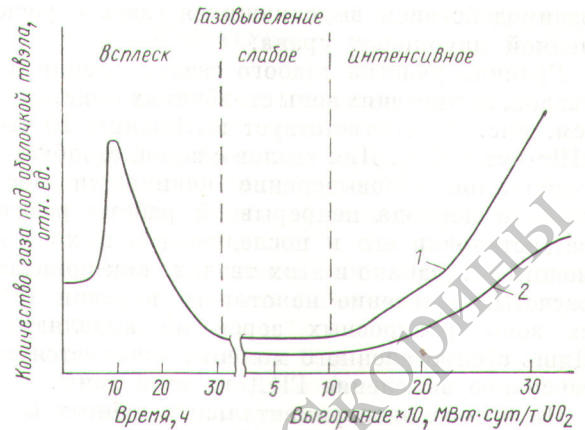


Рис. 5. Изменение количества ГПД под оболочкой твэла в течение облучения

1 — при работе твэла; 2 — при остановке реактора

еще меньше, но длительность спада давления при этом увеличивается.

При заполнении твэлов инертными газами до давления не менее 5 ат давление до и после всплеска практически одинаково.

Изменение количества газов под оболочкой, вызывающее всплеск давления, происходит в результате десорбции с поверхности разогретой двуокиси урана технологических газов, накопившихся в процессе переработки и хранения топлива. Это подтверждается тем, что кривая роста давления при всплеске удовлетворительно описывается соотношением $P - P_{нач} = P_{макс} \exp(-E/RT)$ [$E = 5000 \div 8000$ кал/моль]. Последующее поглощение газов связано, по-видимому, с химическим

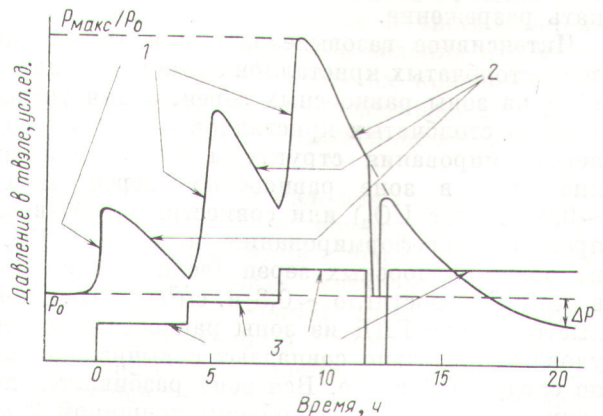


Рис. 6. Характер изменения давления в твэле при всплеске: 1 — передний фронт; 2 — задний фронт; 3 — мощность реактора

взаимодействием выделившихся газов с раскаленной двуокисью урана.

Граница участка слабого газовыделения для твэлов, не имеющих зоны столбчатых кристаллов (см. рис. 5), соответствует выгоранию 10 тыс. МВт·сут/т UO_2 . Для твэлов с зоной столбчатых кристаллов газовыделение начинается после первого периода непрерывной работы реактора, остановки его и последующего выхода на мощность. Однако в этих твэлах, как показали расчеты, в течение некоторого времени ГПД из зоны равноосных зерен не выделяются. Лишь с определенного момента начинается интенсивное выделение ГПД из этой зоны.

На основе экспериментальных данных было вычислено накопление ГПД в зоне равноосных зерен к моменту начала интенсивного выделения. Для твэлов без зоны столбчатых кристаллов это накопление составляет $\sim 0,3$ н. см³/г UO_2 .

Для твэлов с зоной столбчатых кристаллов вычисление накопления ГПД затруднительно, так как существенная и меняющаяся с обогащением неравномерность удельного энерговыделения по радиусу твэла влияет на распределение температуры топлива, на величину зоны равноосных зерен и на количество образующихся ГПД. Однако по результатам оценки накопления ГПД в твэлах с зоной столбчатых кристаллов также близко к $0,3$ н. см³/г UO_2 . Таким образом, газовыделение из зоны равноосных зерен становится существенным после накопления ГПД в количестве $\sim 0,3$ н. см³/г UO_2 . Следует отметить, что на участке с малым газовыделением количество газов под оболочкой определяется в основном количеством газов, оставшимся после окончания всплеска. Поэтому в ряде случаев в твэлах может возникнуть разрежение.

Интенсивное газовыделение для твэлов без зоны столбчатых кристаллов связано с выходом ГПД из зоны равноосных зерен, а для твэлов с зоной столбчатых кристаллов — с процессом переформирования структуры (если накопление ГПД в зоне равноосных зерен менее $\sim 0,3$ н. см³/г UO_2) или совместным действием процесса переформирования и выхода ГПД из зоны равноосных зерен (если накопление в этой зоне достигло $\sim 0,3$ н. см³/г UO_2). Данные о выходе ГПД из зоны равноосных зерен удовлетворительно совпадают с вычисленными по следующей схеме. Вся зона разбивается по радиусу на кольцевые объемы толщиной $2a$, где a — радиус эквивалентной сферы, зависящей от исходной плотности [6]. Для каждого кольцевого объема температура топлива и удель-

ная плотность энерговыделения считаются постоянными. Количество стабильных ГПД, выделившихся из топлива за время облучения τ , вычисляется путем решения уравнения диффузии для сферы

$$\partial N / \partial \tau = D \Delta N + fY, \quad (1)$$

где N — количество атомов ГПД в твердом теле, ат./см³; D — коэффициент диффузии, см²/с; f — скорость деления ²³⁵U, ядер/(см³·с); Y — суммарный выход стабильных ГПД на один акт деления.

Решение этого уравнения при начальном [$N(r, 0) = 0$] и граничном [$N(a, \tau) = 0$] условиях для количества атомов ГПД, находящихся вне твердого тела (N') в объеме V , имеет вид

$$N' = fY\tau VF, \quad (2)$$

где F характеризует долю конечной концентрации атомов, выделяющихся из сферы:

$$F = 1 - \frac{6a^2}{90D\tau} + \frac{6a^2}{\pi^4 D\tau} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{n^4} \exp\left(-\frac{n^2\pi^2 D\tau}{a^2}\right). \quad (3)$$

Коэффициент определяется по формуле

$$D = 1,65 \cdot 10^{-8} \exp\left(-\frac{70000}{RT}\right). \quad (4)$$

По мере роста выгорания приведенный коэффициент диффузии $D' = D/a^2$ увеличивается вследствие уменьшения a . Относительный радиус эквивалентной сферы ($a/a_{нач}$) при выгорании 10, 20, 30 и 40 тыс. МВт·сут/т UO_2 составляет 1,0; 0,45; 0,31 и 0,22 соответственно.

Это изменение a вычислено по увеличению поверхности топлива, сопровождающемуся возрастанием сорбции ГПД по мере роста выгорания, что было обнаружено в экспериментах при остановках реактора (см. рис. 3 и 4). Количество сорбируемых газов определялось по разнице между количеством ГПД под оболочкой, измеренном при работающем и остановленном реакторе. Из рис. 3 и 4 видно, что сначала количество сорбируемых газов меняется мало, а затем существенно возрастает. Это свидетельствует об увеличении сорбирующей поверхности топлива, что связано, очевидно, с растрескиванием топлива в зонах равноосных зерен и столбчатых кристаллов при остановках реактора.

Заключение. Выявлены основные закономерности в характере газовыделения и в поведении двуокиси урана при работе твэла до глубоких выгораний. Поведение двуокиси и газовыделение непосредственно зависят от распределения энерговыделения и температуры по радиусу

твэла, от процесса формирования структуры и выгорания в различных зонах топлива. Газо-выделение из двуокиси урана в течение облучения может быть рассчитано в предположении, что из зоны столбчатых кристаллов выделяются все ГПД и что выделение ГПД из зоны равноосных зерен происходит согласно механизму термически активированной диффузии.

Сорбция ГПД поверхностью топлива может привести к ошибкам в определении количества ГПД, выходящего из двуокиси урана, при послереакторном определении его методом прокола оболочек.

Поступила в Редакцию 15/1 1975 г.
В окончательной редакции 25/XI 1975 г.

УДК 539.211:546.79

Распыление тонких слоев закиси-окиси урана под действием осколков деления при малых дозах облучения

БЕССОНОВ В. А., ИВАНОВ Г. П., ГРИНЕВИЧ Н. А., БОРИСОВ Е. А.

Известно, что распыление тонких урансодержащих слоев в нейтронном потоке происходит путем отрыва от поверхности кусочков материала [1—4]. Размеры отрываемых конгломератов при температуре в треке 10^4 °С и плотности вещества 11 г/см³ могут достигать 40 Å [5].

Наблюдения на электронном микроскопе показывают, что в результате распыления облучаемых тонких пленок UO_2 толщиной 40 — 400 Å и образцов металлического урана при флюенсах нейтронов, больших 10^{14} нейтр./см², на коллекторе оседают частицы вещества в виде «островков» или пятен с линейными размерами до 400 Å. Такие «островки» вещества содержат порядка 10^4 атомов урана [1, 3].

В работе [4] при анализе сборников распыленного материала по методике трековых детекторов также обнаружены кусочки вещества, видимые на трековом детекторе как «звезды». Авторы исходили из предположения, что «звезды» образованы при вторичном облучении кусочков вещества, наблюдаемых в электронном микроскопе [4]. Обнаружено также распыление тонких слоев окиси урана в виде конгломератов большого размера (до 10^9 атомов в кусочке) [6].

Распыление поверхности ниобия с образованием больших конгломератов, содержащих до 10^{11} атомов, под действием нейтронов с энергией 14 МэВ наблюдали Каминский и Дас [7]. Одна-

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Самсонов Б. В. и др. Препринт НИИАР П-177. Димитровград, 1972.
2. Самсонов Б. В., Фрей А. К. «Атомная энергия», 1971, т. 30, вып. 4, с. 358.
3. Самсонов Б. В., Фрей А. К. «Атомная энергия», 1971, т. 31, вып. 2, с. 136.
4. Цыканов В. А., Самсонов Б. В. Техника облучения материалов в реакторах с высоким потоком нейтронов. М., Атомиздат, 1973.
5. Самсонов Б. В., Лобанов Г. П., Сидоров В. В. «Бюл. изобрет. и товарных знаков», 1974, № 41, с. 48.
6. Ластман Б. Радиационные явления в двуокиси урана. М., Атомиздат, 1964.

ко в другой работе [8] не обнаружено распыления поверхности некоторых металлов под действием осколков деления с образованием конгломератов >1000 Å. Возможно, что образование конгломератов в опытах Роджерса является следствием перераспределения распыляемого материала на поверхности коллектора под облучением [9]. Не ясно также, как зависит эффект распыления конгломератами от природы изучаемой поверхности (металл — неметалл).

Таким образом, возможность распыления урансодержащих материалов и чистых металлов под действием осколков деления путем отрыва от поверхности больших конгломератов не получает однозначного подтверждения. Изучение этого явления представляет несомненный интерес.

В настоящей статье изложены результаты исследования распыления поверхности под действием осколков деления с использованием методики твердотельных трековых детекторов (ТТД). Для этого тонкий слой закиси-окиси урана, обогащенного по ^{235}U , помещали в сборку, состоящую из эмиттера (тонкая пленка закиси-окиси урана толщиной 4 мг/см² на алюминиевой фольге) и коллектора (алюминиевый диск диаметром 10 мм), разделенных диафрагмой толщиной $0,5$ мм с внутренним диаметром $3,5$ мм. Сборку в кварцевой ампуле откачивали