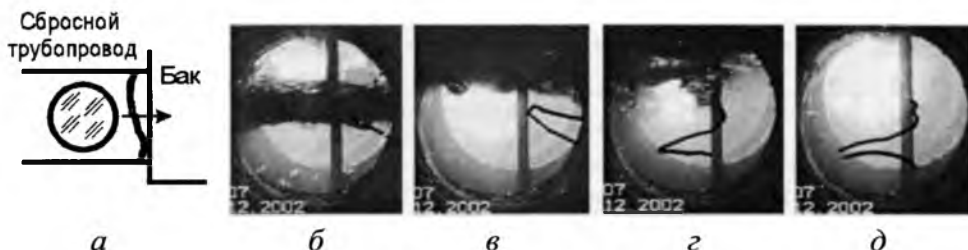


ектной области работы систем аварийного отвода тепла и связано с относительно низкими динамическими напорами потока, большим диаметром трубопроводов и другими факторами. Наряду с указанной причиной в подобных системах большое влияние на их работу могут оказывать процессы генерации пара и характер течений в элементах защитной оболочки. Наличие поперечных ребер с отверстиями может способствовать неустойчивости течения паровой и жидкой фаз в сбросном трубопроводе. Подтверждением таких процессов могут быть результаты видеосъемки на выходном участке сбросного трубопровода в двухфазной области. На рис. 5 направление течения теплоносителя определяется по расположению тонких нитей, прикрепленных к вертикальному стержню.



Р и с. 5. Изменение направления течения двухфазного потока в выходном сечении сбросного трубопровода: а — расположение канала при видеосъемке; б — устойчивый двухфазный поток с разделным течением фаз в сторону бака аварийного отвода тепла (вправо); в — повышение уровня жидкости; г — изменение направления течения; д — продолжение течения в обратную сторону, все сечение занято жидкостью из бака аварийного отвода тепла

Сложность процессов тепломассообмена в подобных системах, их актуальность в обеспечении безопасности АЭС требуют дополнительных исследований в слабоизученной области режимных и геометрических параметров: трубы большого диаметра, низкое давление, низкая массовая скорость, стратифицированные течения, нерегулярные конденсационные процессы в трубах и больших объемах.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Монин А.С. Теоретические основы геофизической гидродинамики. Л.: Гидрометеиздат, 1988.
2. Абрамович Г.Н., Крашенинников С.Ю., Секундов А.Н. Турбулентные течения при воздействии объемных сил и неавтомоделности. М.: Машиностроение, 1975.

УДК 539.22.621.039.548.343

ДИФФУЗИЯ УГЛЕРОДА В УРАНЕ ПРИ ТЕРМИЧЕСКОЙ ОБРАБОТКЕ В ВАКУУМЕ

Орлов В.К., Сергеев В.С., Фомишкин М.А., Ростовцев А.А.
(ФГУП ВНИИНМ им. А.А. Бочвара), Круглов А.К. (ЦНИИатоминформ)

Элементный и фазовый состав поверхности урана после термовакuumной обработки. Исследования урана и сплавов на его основе после различных режимов термообработки в вакууме показали высокое содержание углерода на поверхности исследуемых образцов. Методами оже-спектроскопии и вторичной ионной эмиссии

было установлено, что с повышением температуры отжига в вакууме $\sim 10^{-3}$ Па количество углерода на поверхности увеличивается. Особенно большое содержание было обнаружено после отжига при 950 °С. Если после отжига при 350 °С атомная доля углерода на поверхности нелегированного урана составляла около 15%, то после отжига при 950 °С она увеличилась до 47—49%, причем атомная доля кислорода в обоих случаях была равна 20—30% и 9—12% соответственно. При рентгенодифракционных исследованиях на поверхности образцов урана после отжига при 950 °С наряду с рефлексами диоксида урана обнаружены рефлексы, принадлежащие фазе с г.ц.к.-решеткой с параметрами, близкими к параметрам монокарбида урана.

Ранее аналогичное явление было установлено на цирконии и его сплаве с 2,5% Nb. Отжиг этих материалов при температуре существования β -фазы циркония сопровождался образованием на поверхности образцов пленки оксикарбида циркония за счет углерода, присутствующего в виде примеси в цирконии и сплавах на его основе. Образование на поверхности урана карбидной фазы и высокая диффузионная подвижность углерода, особенно в γ -фазе, давали основание предположить, что и в цирконии, и в уране во время отжига в вакууме происходят одинаковые процессы, связанные с диффузией углерода.

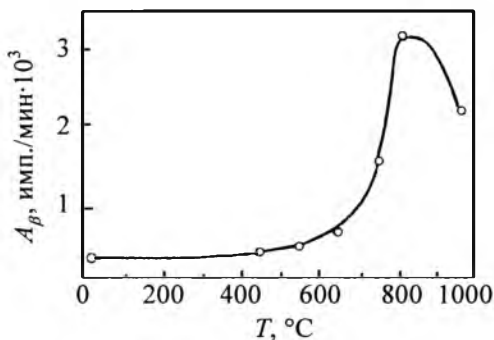
Изучение миграции углерода в уране при термовакuumной обработке меченых атомов. В настоящей работе использовали технический уран, в котором массовая доля циркония, молибдена, железа и кремния составляла 0,01, 0,01, 0,035 и 0,032% соответственно. В целях изучения миграции углерода в урановый слиток был введен β -излучающий ^{14}C . Длина пробега β -частиц энергией 155 кэВ в уране составляет не более 10 мкм, поэтому при радиометрических измерениях будут регистрироваться только β -частицы, выходящие из тонкого приповерхностного слоя. Следовательно, превышение β -активности поверхности образцов после отжига по сравнению с исходной (до отжига) будет означать, что происходит диффузия углерода из объема урана к его поверхности.

Изотоп углерода ^{14}C представлял собой мелкодисперсный порошок графита. Для введения в уран его сначала в камере в атмосфере аргона смешивали с порошком урана. Полученную смесь засыпали в отверстие, высверленное в урановой заготовке, в которое затем запрессовывали урановую заглушку. Подготовленную таким образом заготовку отжигали при 1000 °С в течение 5 ч в вакуумной печи. В процессе отжига в результате взаимодействия порошков урана и графита образовывался карбид урана. После этого заготовку многократно переплавляли в электродуговой печи в среде очищенного аргона для равномерного распределения углерода в слитке. Сплавить уран с порошком графита без указанных операций не удалось. Порошок при расплавлении урана всплывал на поверхность расплава и «сдувался» пламенем дуги.

Таким образом был выплавлен слиток урана массой 120 г, в котором содержалось около 10 мКи ^{14}C . Общая массовая доля углерода (включая ^{14}C) в слитке составляла $4,5 \cdot 10^{-2}$ %. Слиток урана прокатывали при 600 °С до толщины 0,6 мм, из пластины вырубали образцы диаметром 8 мм. Одинаковые геометрические размеры и масса образцов позволяли при радиометрических измерениях строго учитывать фон, создаваемый природной радиоактивностью урана.

Образцы отжигали в лабораторной печи, снабженной азотной ловушкой для вымораживания паров масла от вакуумных насосов. Печь нагревали при остаточном давлении $3 \cdot 10^{-3}$ Па, которое в процессе нагрева возрастало не более чем до $5 \cdot 10^{-3}$ Па. Перед отжигом одну поверхность образцов обрабатывали шлифованием с последующей механической полировкой по методике изготовления металлографических шлифов.

Изменение содержания и характер распределения углерода на поверхности образцов после отжига изучали радиометрическим методом и методом контактной авторадииграфии. При радиометрических измерениях использовали торцевой пропорциональный счетчик с пересчетным прибором ПСО-2-2ЕМ. Для контактной авторадииграфии применяли фотопластинки типа МР с толщиной эмульсионного слоя 10 мкм. Одновременно с β -излучением углерода регистрируется и γ -излучение урана, поэтому для учета фона была построена его зависимость от массы образца. В качестве эталона был использован образец диаметром 8 мм, изготовленный из того же урана, но без радиоактивного углерода. Для построения зависимости фона от массы эталон утоняли электрохимическим травлением при сохранении площади поверхности с последующим взвешиванием и измерением радиоактивности (фона). Полученную зависимость фона от массы образца использовали при определении β -радиоактивности углерода в исследуемых образцах.

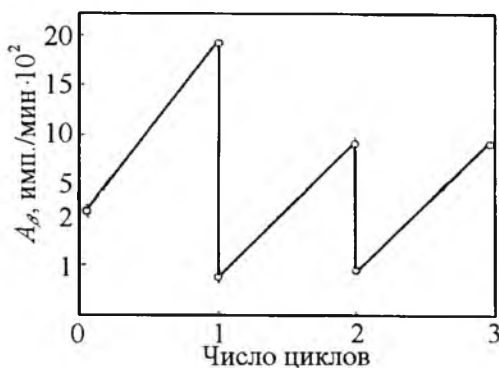


Р и с. 1. Зависимость β -активности поверхности образцов урана от температуры отжига

Экспериментально полученная зависимость β -активности поверхности образцов урана от температуры отжига продолжительностью 4 ч приведена на рис. 1. Результаты измерений показали, что незначительное повышение β -активности начинает обнаруживаться после отжига при 450 °C. При дальнейшем повышении температуры отжига в области температуры существования α -фазы урана β -активность медленно возрастает и после отжига при 650 °C увеличивается примерно на 15% по сравнению с исходной. Резкое повышение β -активности наблюдается в области температуры существования β - и γ -фаз урана. Так, после отжига при 800 °C в течение 4 ч β -активность увеличилась в 12 раз. Однако в случае отжига при 950 °C активность возрастала в меньшей степени, чем после отжига при 800 °C.

Было проведено послойное определение содержания углерода в образцах после одно-, двух- и трехкратного отжига в течение 4 ч одних и тех же образцов при 950 °C. После каждого отжига и измерения радиоактивности поверхностный высокоактивный слой удаляли электрохимическим травлением (рис. 2). После первого отжига активность увеличилась в 8,9 раза, после удаления поверхностного слоя толщиной 10 мкм она стала в 2,5 раза ниже, чем до отжига образца. После второго и третьего отжигов возрастание активности было не столь значительным, как при первом отжиге, хотя после удаления поверхностных слоев она остается на том же уровне, что и при удалении слоя после первого отжига.

Для оценки содержания углерода, оставшегося в уране после указанных циклов отжиг—травление, был проведен их послойный анализ. Слои металла с поверхности образцов удаляли электрохимическим травлением, и измеряли β -активность поверхности оставшейся части образца. После первого отжига β -активность углерода на расстоянии 15—20 мкм от первоначальной поверхности снизилась в 2,8 раза. Далее она немного возрастает, оставаясь при этом в 1,6 раза ниже исходной активности по всей толщине образца.

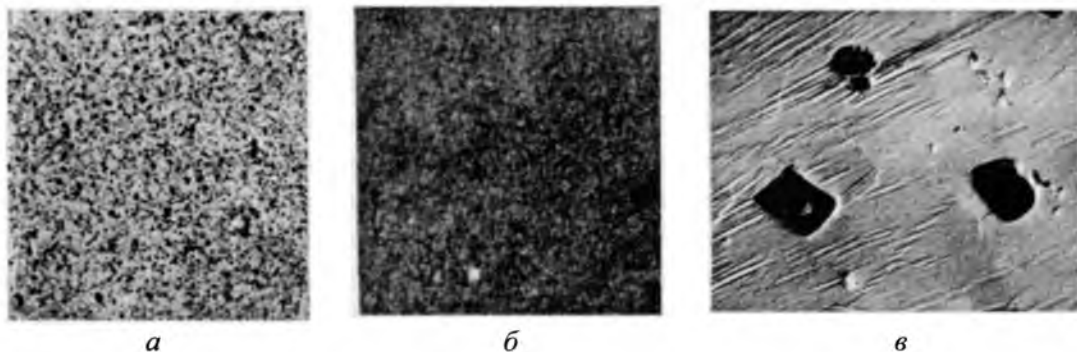


Р и с. 2. Зависимость β -активности поверхности образцов урана от числа циклов отжиг—травление

После второго и третьего циклов происходит дальнейшее снижение активности во всем объеме образцов. За три цикла отжиг—травление β -активность, следовательно, и концентрация углерода в образце урана толщиной 0,6 мм снизилась в 2 раза по сравнению с исходной.

Таким образом, полученные результаты однозначно свидетельствуют о том, что в образовании фазы с г.ц.к.-решеткой на поверхности урана в процессе вакуумного отжига участвует углерод, который в качестве примеси находится в уране. Доставка углерода из объема металла к поверхности осуществляется путем диффузии. По данным оже-спектроскопии в состав поверхностного слоя входит кислород. В фазе с г.ц.к.-решеткой, образовавшейся при 950 °С, атомная доля кислорода вблизи наружной поверхности равна 8%, снижаясь по толщине слоя в сторону урана до 4%. Таким образом, фаза, которая образуется на поверхности урана, является оксимонокарбидом $U(CO)$.

На автордиограмме образца до отжига (рис. 3, а) на общем сером фоне наблюдается большое количество равномерно распределенных черных точек с высокой плотностью почернения. Почернение в этих точках создается крупными, очевидно, первичными включениями монокарбида урана, которые выделяются из расплава при его кристаллизации. Размер этих выделений достигает 10 мкм и более (рис. 3, в). Серый фон со значительно меньшей плотностью почернения имеет дис-



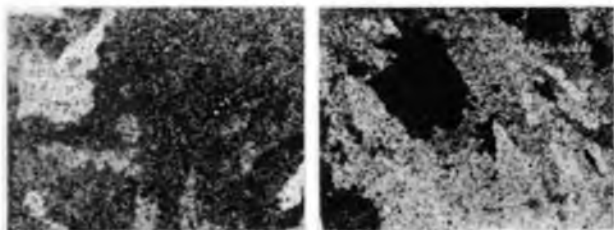
Р и с. 3. Автордиограмма образцов урана, содержащих ^{14}C до (а, $\times 15$) и после термообработки (б, $\times 15$) в вакууме при 950 °С в течение 4 ч и структура урана с включениями монокарбида (в, $\times 2000$)

кретный характер и создается более мелкими включениями монокарбида, которые выделяются на границах субзерен при фазовых превращениях в процессе охлаждения слитка.

Авторадиограммы, которые сняты с поверхности образцов, отожженных при 350 и 450 °С, имеют аналогичный характер.

После отжига образца при 950 °С β -активность поверхности увеличилась в 10 раз. Авторадиограмма этого образца (рис. 3, б) характеризуется высокой и достаточно равномерной плотностью почернения. Это свидетельствует об образовании на поверхности образца во время отжига сплошного слоя оксимонокарбида. Нужно отметить, что экспозиция при снятии авторадиограммы исходного образца составляла 1,5 ч, тогда как после отжига при 950 °С она не превышала 2,5 мин.

Наибольший интерес представляют авторадиограммы поверхности образцов, отожженных при 650 °С (рис. 4). На этих авторадиограммах двух разных образцов



Р и с. 4. Авторадиограммы образцов урана, содержащих ^{14}C , после отжига при 650 °С в течение 4 ч ($\times 15$)

имеются области с разной плотностью почернения, что является следствием разной концентрации углерода на поверхности областей, которые представляют собой макрозерна α -урана. Разная концентрация углерода на поверхности отдельных макрозерен может быть обусловлена только

разной скоростью диффузии углерода в этих зернах из объема к поверхности вследствие их различной кристаллографической ориентации. Таким образом, в α -урани, имеющем низкосимметричную орторомбическую кристаллическую структуру, наблюдается анизотропия не только самодиффузии, но и диффузии углерода, который образует с α -ураном, скорее всего, твердый раствор внедрения.

Рассмотренные результаты показывают, что в уране при его термовакuumной обработке происходят те же процессы, которые ранее были обнаружены в цирконии. Не исключено, что они могут иметь место и в других металлах и сплавах. Для этого необходимо выполнение как минимум трех условий: высокое сродство металла к углероду, высокая диффузионная подвижность углерода в этих металлах и низкое парциальное давление кислорода при термообработке.

Выводы. Методом меченых атомов с применением радиоактивного углерода ^{14}C установлено, что в процессе отжига урана в вакууме $\sim 10^{-3}$ Па при температуре выше 550 °С происходит диффузия примесного углерода из объема урана к его поверхности. Установлено, что диффузия углерода к поверхности урана обусловлена образованием на поверхности оксимонокарбида урана. Методом контактной авторадиографии показано, что в α -урани отмечается зависимость скорости диффузии углерода в зернах от кристаллографического направления, т.е. наблюдается анизотропия диффузии углерода в кристаллической решетке α -урана.