

第二屆和平利用原子能國際會議文獻

核燃料和廢物處理

2

中國科學院原子核科學委員會編輯委員會編輯

科學出版社出版

核燃料和废物处理(2)

中国科学院原子核科学委员会编辑委员会编

*

科学出版社出版 (北京朝阳门大街117号)
北京市书刊出版业营业登记证出字第061号

中国科学院印刷厂印刷 新华书店总经售

*

1960年1月第一版	书号: 2058 字数: 80,000
1960年1月第一次印刷	开本: 787×1092 1/16
(京) 0001-4,000	印张: 2 3/4 插页: 5

定价: 0.63 元

目 录

P/179	鈾化学富集物的精制及氧化鈾和金属鈾的生产.....	(1)
P/1587	钷的有机络合物在有机介质中的解离作用.....	(7)
P/2307	制造工艺对鈾的组织 and 性质的影响.....	(10)
P/2404	二氧化鈾的性质.....	(23)

鈾化学富集物的精制及氧化鈾和金属鈾的生产*

R. 狄林(R. Gelin) H. 莫根德(H. Mogard) B. 納尔遜(B. Nelson)†

这篇文献介绍了在斯德哥尔摩(Stockholm)原子能股份公司(AB Atomenergi)为了从四价鈾的磷酸盐化学富集物中生产氧化鈾和金属鈾所使用的方法。在前次日内瓦會議的文献^[1]中已經叙述过这种鈾化学富集物的生产方法。

在图1中表示出的化学过程简单流程,是用以将四价鈾的磷酸盐化学富集物轉变成高純度的三氧化鈾。其中两个被称为硷性溶解和碳酸盐化过程的阶段,是阿·士特林(O. Stelling)教授及其同事从1949—1951年間在斯德哥尔摩皇家技术研究所无机化工系发展起来的。

适用于燒結式的 UO_2 的生产和鈾金属錠的生产,現在差不多成了一种标准的过程。在該公司里还原和氟化的技术是被发展了。为了将氟化物还原成鈾金属所采用的技术,虽然基本是法国的方法,但略有改进。

鈾化学富集物的精制

硷性溶解

鈾化学富集物的主要成份給出在表1中。鈾是以四价鈾的磷酸盐存在。硷性溶解的目的,是借助于四价鈾的磷酸盐轉变成四价鈾的氢氧化物及容易溶解的磷酸鈉以除去磷酸,按照这一反应

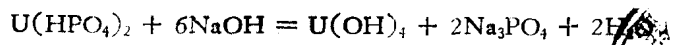


表1 鈾的化学富集物

	%
U	36.0
Al	3.9
Fe	0.8
R.E. 大約	0.04
PO_4	31.7

这一溶解是用2N的氢氧化鈉溶液在95°C分两个阶段进行。苛性鈉的用量是2.5公斤/公斤U。而溶解時間是每一阶段二小时。

磷酸盐的大部份是在阶段“Ⅰ”溶解,而仅仅其中一小部份是在阶段“Ⅱ”溶解,在阶段“Ⅱ”氢氧化鈉的消耗是非常少的。因此,在阶段“Ⅱ”已經分离出四价氢氧化鈾的溶液可以送到阶段“Ⅰ”去,而后能够給氢氧化鈉浓度一个小量的調整。

这种四价鈾的氢氧化物很难过滤,因此,使四价鈾的氢氧化物与磷酸鈉溶液分开是用

* 第二届和平利用原子能国际會議文献, A/CONF.15/P/179, 瑞典, 1958年5月19日, 原文: 英文。

† 瑞典, 斯德哥尔摩, 原子能股份公司。

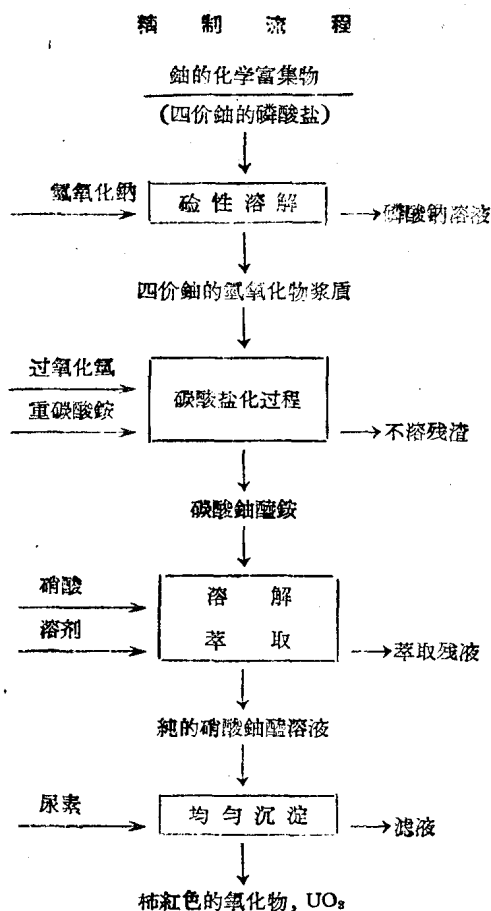


图1 精制流程图

沉淀和傾注法。在阶段“II”以后四价鈾的氢氧化物沉淀是用水洗滌二次。

表2中給予了从硷性溶解产品的一个干燥試样主要成份的分析。与这种鈾化学富集物的分析(表1)相比較,显示出这种硷性溶解具有大大减少磷酸和鋁两者的浓度的作用。

表2 四价鈾的氢氧化物

	%
U	58.7
Al	0.3
Fe	1.4
R.E. 大約	0.04
PO ₄	1.7

碳酸(盐)化过程

从硷性溶解过程所得到四价鈾的氢氧化物浆质,是用过氧化氢氧化并用重碳酸铵在60—70℃处理一小时。鈾的絕大部分是被溶解而杂质却大量留在不溶解的残渣中。这种残渣很难过滤。矽藻土是被使用作为一种助滤物。

在这一过程中,一些少量的氟化鈉是被加入,加入氟化鈉是因为它可能非常有效地减少稀土在溶液中的浓度。

滤液包括洗滌液一同流入結晶器。用加入重碳酸铵以及冷却这溶液到大約10℃,碳酸鈾鹽铵(NH₄)₄UO₂(CO₃)₂便被結晶出来。在結晶以前这种溶液中鈾的浓度大約是

50 克/升，而結晶以后是 1.5—3.0 克/升。这种結晶产物是被过滤出来并用飽和的重碳酸鈉溶液洗滌。大約 50 % 的滤液是被循环在这一过程中，而其余的是用如下的方法处理。这种溶液的 pH 值是借助于硫酸的加入被减小到 5，并将溶液煮沸。二氧化碳被煮沸而赶出，鈾則被沉淀成鈾盐被过滤出来，并被重新循环到溶解在重碳酸鈉溶液中。

从碳酸盐化过程所得到不溶解的殘渣中含有大量的鈾，为了将鈾提取出来，所以把它送回到油頁岩鈾矿的浸出工段。一个碳酸鈾鹽鈉的試样分析是給出在表 3 中。具有高的中子吸收截面的杂质浓度是低的。

表 3 从碳酸鈾鹽鈉得到的 UO_2

	含量为 ppm
B	< 0.5
Cd	< 1
Co	< 3
Mn	< 3
V	40
Ni	< 3
Cr	3
Cu	9
Fe	~ 100
Na	< 1000
Ca	~ 100
Ba	少量
P	< 30
Si	少量
Sn	< 3
Mg	20
Pb	< 3
R. E.	检查不出

溶剂萃取

从碳酸盐化过程中所得到的碳酸鈾鹽鈉是溶解在硝酸中并加入硝酸鈣，得到一个每升大約含有 200 克鈾，0.7 M 的游离 HNO_3 酸及 3 M $Ca(NO_3)_2$ 的溶液。这种溶液是用甲烷异丁酮 (hexone) 萃取在一个多級混合萃取柱中。有机相对水相的流速比大約是 1。在有机相中的鈾再用蒸馏水剝下(反萃取)。有机相对水相的流速比也大約是 1。这种萃取柱是一根六英寸直径的玻璃 (Pyrex) 管，帶有不銹鋼的隔板、折流板以及推进器(叶輪)。液流是从不銹鋼的压容器供給，其流速是用轉子流量計測定。

均匀沉淀

这种从溶剂萃取的硝酸溶液中的鈾，具有足够高的純度。为了将它轉化适用于干法(氟化)过程，采用了均匀溶液沉淀法。

这一过程的基本反应是氨基甲酸 (carbamide) 在高温时水解：



二氧化碳从这一酸性的硝酸鈾鹽鈉溶液中逸出，而氨則被抑制，引起一个 pH 值慢慢均匀地升高以及鈾盐的沉淀。

这种均匀沉淀是以每批 150—200 公斤鈾，在一个装有蒸汽套管加热的反应器中，在激烈攪拌的情况下进行。

从萃取来的酸性硝酸鈾鹽鈉溶液的 pH 值是被調节到 2.5—3，以及大約每公斤鈾一公

斤尿素(urea)是做成过滤液被加入。这种溶液被加热到沸腾并保持二小时,沉淀即被完成。这种沉淀是容易过滤的。

这种滤液中含有较少于10毫克U/升。这种铀盐是在一个浅盘式炉(tray-furnace)中,在大约250℃被转化成 UO_3 。从这一过程得到一种非常适用于继续处理的粉末。

表4表示这个纯氧化物的分析,杂质的浓度已经被减少到一个非常低的水平。

表4 从均匀沉淀得到的 UO_3

	含量为 ppm
B	< 0.5
Cd	< 1
Co	< 3
Mn	< 3
V	< 3
Ni	< 3
Cr	< 3
Cu	< 3
Fe	15
Na	< 100
Ca	< 100
Ba	少量
P	< 30
Si	极少量
Sn	< 3
Mg	< 3
Pb	< 3
R.E.	检查不出

氧化铀及金属铀的生产

这里采用的程序是: 1. 煅烧的 UO_3 用氢气还原; 2. UO_2 的“干法”氟化; 3. UF_4 的钙还原法及 4. 最后U铀在高真空中熔铸。 UO_2 产品的一部份是进一步处理成氟化物及金属,而它的另一部份是被用作为氧化物的烧结。

UO_3 的氢气还原

煅烧好的 UO_3 是用氢气还原成 UO_2 , 温度大约在625℃或800℃视这种氧化物随后将被用作氟化或烧结的目的而定。还原是在一个连续操作的炉子(图2)里进行。这种粉状氧化物是慢慢地供给通过一个微微倾斜的, 从外面加热的旋转耐热钢管, 这样大约10公斤这种粉状物的装料将在稳定的搅拌下向前移动。氢气过量大约1.5倍于化学计算量, 在一个对流的方向通过氧化物层。放出的气体在空气中燃烧, 而任何铀尘是随后通过湿的过滤系统而除去。氧化物粉装入旋转管是用一个螺旋输料机在一个不锈钢的給料漏斗底下操作, 煅烧的 UO_3 是间歇地装入給料漏斗中。在炉子的卸料端, UO_2 粉是连续地从旋转管放入一个能够在一定时间间隔更换的铝制容器中。这个炉子的单位容量大约是25公斤 UO_2 每小时。

在还原温度下, 均匀沉淀得到的 UO_3 , 是很快地在移动而不会形成任何硬的聚结块。为了以后的氟化, 这种 UO_2 是有意地生产成一种活性的状态。因此, 它必须保持在一种非氧化性(CO_2)的气氛下。这种 UO_2 粉已被确认是很好适用于直接烧结, 因此不需要另外细分。原来 UO_3 “微粒”的外形仍被保留。每一个 UO_2 的“微粒”具有一个平均的大小

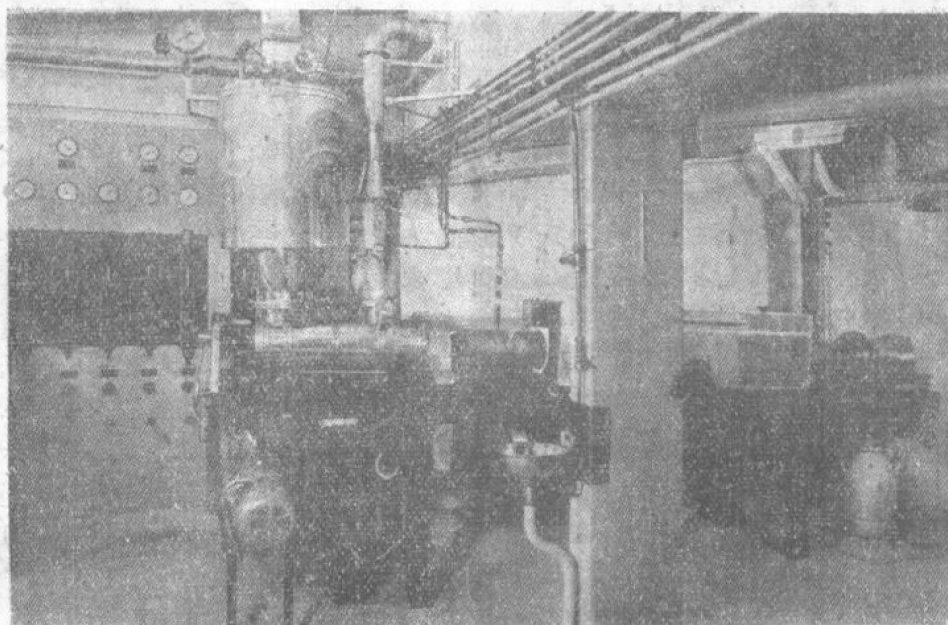


图2 生产 UO_2 的还原炉外观图

在左边可以看到垂直的圆筒状的不锈钢料斗,里面包含煅烧好的 UO_3 粉。在料斗下面有一个螺旋输送机,通过水平的热绝缘圆筒状部分,把料粉输送到炉中。这个炉子带有它微微倾斜的耐热钢管,是表示在图的中部。

在右边是炉子的卸料端,在该处装有 UO_2 容器。注意燃烧放出气体的火焰在紧靠着左边 UO_3 料斗的右面。

约 40 微米,而是由一些大约 1 微米大小或更小些的极细的氧化物晶体所组成的球状聚集体。这种 UO_2 的烧结方法是详细记述在另一文献^[2]中,同样被提供到这次会议上。

UO_2 的“干法”氟化

UO_2 的氟化是约在 $450^\circ C$ 在一个预热的 HF 气流下,在一个连续操作的,按照前面所叙述过的还原炉同样普通的原理所建造的炉子中进行,在这种情况下,虽然反应速度很慢,但仍然获得了至少每小时 10 公斤的产量。值得注意这两个炉子在大小方面可以相比拟。

进入的 HF 气体必须预热到 $250^\circ C$ 以增加反应速度,而要求氟化氢气体的过量是大约二倍于化学计算需要量。放出的气体中含有大量的 HF 是被中和在一个蒸气器系统中,用 5% 的 NaOH 水溶液循环。为了保持在炉子系统中的压力平衡,在 HF 气体中加入一些氩气。

这个过程联系到一些技术上的问题,首先是对炉子暴露在热的 HF 气体中的材料的腐蚀必须考虑。这个困难已经克服,是用纯的金属镁作为旋转钢管的内衬材料,同样对气体预热器及螺旋给料机也是这样。任何镁沾污氟化物产品是没有危害的。另一个问题是关于旋转管与炉子的静止端部分中间要求密封。这个问题在现在这种炉子设计中以采用正气压密封的原理解决了。一个二氧化碳的正压是被维持在内部的聚氯乙烯 (Teflon) 密封环与外部的橡皮密封环之间。

同 UO_2 一样, UF_4 粉末也继承原来 UO_3 粉末微粒的形状。其松装密度非常低,大约 1.9 克/立方厘米,而颗粒大小分布范围也极有限。这种产品的纯度对于氧气来说是非常低的, UO_2 及 UO_2F_2 的含量是每个都少于 0.5%。

7/10/07

对于这种炉子的操作,在我們 3—4 年中的經驗証明是十分好的,而且很明显,它适用于大規模的 UO_2 及 UF_4 的生产。德国狄庫薩 (Degussa) 公司現在正在制造这种类似設計的商业联合規模的設備。

UF₄ 的鈣还原法

用鈣还原 UF_4 成 U 金属与“鋁热法”相似,是一个不連續的过程。粉状氟化物与 4—5 毫米的金属鈣粒,在一个按重量計 10% 的过量,均匀地混合,一小份一小份地装料在一个圓筒状的,带有一个漏斗形状的燒結氟化鈣的坩堝 (內径 90 毫米) 底部的石墨容器 (內径 350 毫米) 中。这个反应罐是密封在一个不銹鋼的容器中,在反应开始之前把它抽真空并用氬气充入到 0.8 大气压。当鋁热式混合物燃烧时压力将升高到 1.2 大气压以上时,鋼容器上装载彈簧的頂盖将自动打开通入大气中。

在正常的每批操作中,允許每次还原一个 30 公斤的錠子。这个流程的生产率大約是 98%, 一个代表性的分析写明如下: C 100 ppm, Si 80, Fe 50, N 30, 以及 B 0.15 ppm。一个完全的分析是給出在表 5 中。在石墨容器的內表面上,涂一薄层的 MgO 保护层,可使碳的吸入量化为最小。这种石墨容器装置能重复使用 20—30 次。

表 5

B	0.15	ppm	Na	< 100	ppm
Cd	< 1	ppm	Ca	< 100	ppm
Co	< 3	ppm	Al	< 250	ppm
Mn	3	ppm	P	< 30	ppm
N	30	ppm	Si	< 80	ppm
V	< 3	ppm	Sn	< 3	ppm
Ni	6	ppm	Mg	5	ppm
Cr	< 3	ppm	Pb	< 3	ppm
Cu	7	ppm	C	100	ppm
Fe	40	ppm			

真空熔炼及鑄造

这种鈰块是在一个 Al_2O_3 衬里的石墨坩堝中,在高真空下重新熔炼,而浇鑄在一个石墨或鋼的模子里。这里所使用的是狄庫薩公司制造的一种傾倒式炉,是用石墨电阻元件加热,同时为了模子的預热是供給一个預热綫圈。在每一次熔炼中是浇鑄 400 毫米长, 30 毫米直径的鈰棒四个一組,相当于 30 公斤的鈰。一次熔炼周期大約持續 5 小时。如浇鑄一种尺寸較小的鈰棒,大約 12 毫米直径的鈰棒而是每七个一批,已經同样成功地生产了。

致謝

在这里所叙述的工作,是在原子能股份公司的工程师以及在研究工作中一班直接参加操作的同志共同努力的結果。作者謹此表示謝意,特別是 S. 弗雷茨恩 (S. Franzén), K.-A. 蔣呆特 (K.-A. Hjelte), R. 克士林 (R. Kiessling), E. 斯福恩克 (E. Svenke), S. 斯福索恩 (S. Svenson), 和 G. 杜德恩 (G. Tydén) 等先生。

参 考 文 献

- [1] Svenke E.: *Recovery of Uranium from Uranium Bearing Alum Shale*; P/ 784, Geneva Conf. (1955).
- [2] Runfors U., Kiessling R., and Schönberg N.: *The Sintering of Uranium Dioxide*; P/142, Geneva Conf. (1958).

[刘希澄譯]

鈣的有机絡合物在有机介質中的解离作用*

M. Taubert†

本研究工作的目的是要探討紙上电泳法在鈣絡合物在有机介質中（条件类似于实际萃取过程中所常用的）解离作用研究中的适用程度。在实际萃取过程中，水相的硝酸浓度可以是 5—6 M。因此，从解离的酸萃取剂的絡合物在有机相的电导机理中的压制作用看来，以导电为基础的方法在这里是不能适用的。

自由电泳需用大量的鈣。如果采用紙上电泳技术并結合应用 α -扫描测量則仅需用极少量的鈣。紙上的电渗，浓度变化，吸附及解吸循环等可能限制被記錄的迁移率的意义，这点是考虑到的。然而这种方法对于半定量的工作來說，被認為是可用的。为了核对紙上电泳法的操作，可以用常量鈣的自由电泳来作为比較实验。

实 驗

电渗是以鉛片接触在相当高的电位梯度^[1]的紙的表面上来实现的。采用封閉的裝置，以限制其蒸发作用，并将此設備放置大气中，保持其温度在 10—14°C 間。

在非標記的磷酸三丁酯 (TBP) 中，用 P^{32} -磷酸三丁酯作为电渗的指示剂。在甲基异丁基酮中以胡蘿卜素为电渗測定剂，在应用三氯甲烷作为介質时則不必用指示剂。

所采用的化学试剂都是化学純的，硝酸鈣溶液是在本實驗室中溶解高純度金屬鈣而制成的。鈣溶液的浓度为 2×10^{-3} M，鈾溶液的浓度为 0.1 M。

紙片上的鈣是用 α -扫描测量来測定，而鈾可用 $K_4Fe(CN)_6$ 的顏色反应来測定。在自由电泳中鈾可在濾紙上用 $K_4Fe(CN)_6$ 滴点法来測定。

在所有情况下有机相是同 5—6 M 硝酸水相处于平衡。

紙上电泳的条件：

Whatman No. 1 濾紙，水平紙条为 28×3 厘米

电压梯度：15—180 伏/厘米

两电极間距离：20 厘米

紙条上所載溶液量，从对 TBP 用 500 微升到对 $CHCl_3$ 用 1200 微升

時間：30—120 分鐘（正常工作）

1200 分鐘（特殊工作）

自由电泳的条件：

玻璃容器，容积为 8 毫升

电压梯度：30—50 伏/厘米

电极区域与电泳区域用 G 3 多孔玻璃隔开

* 第二届和平利用原子能国际會議文献，A/CONF.15/P/1587，波兰，1958 年 6 月 25 日，原文：英文。

† 波兰原子能研究所，放射化学部。

两电极間距离: 11 厘米

時間: 100—300 分钟

結 果 与 討 論

TBP 相

在含有少量水和通常并不含 HNO_3 的 TBP 中, 象分光光度法或电导法测定所表明的, 铀与钍化合物的解离度是很小的^[2,3].

TBP 的相当高粘度 [3.4 厘泊 (cp)] 与低电介常数 (純 TBP 为 7.8, 水饱和过的 TBP 为 14) 对于精确的迁移研究是不利的. 采用 180 伏/厘米超过 1200 分钟不能表明钍放射性的无疑的迁移.

在 50 伏/厘米与 200 分钟的条件, 硝酸铀酰在磷酸三丁酯中的自由电泳表明在电极区域完全没有铀的存在, 而在 1200 分钟后, 由于扩散的结果, 在两个电极区域发现有等量的铀存在.

因此, 采用目前的方法, 对于磷酸三丁酯中钍与铀来说要用本方法来揭示迁移, 那是太小了. 在这些情况中所有絡合物的解离度都可能是很低的.

甲基异丁基酮相

在酮类中当存在硝酸时, 硝酸铀酰的分光光度测定表明有三硝基铀酰絡合物存在^[4].

当电压为 15 伏/厘米时, α -放射性向阳极迁移約为 10 厘米. 由于采用胡萝卜素表明甲基异丁基酮在这种条件下的电渗运动是可忽略的, 因此就不需要作电渗的校正. 所记录的迁移率的定量意义是可疑的, 因为明显的尾巴表明了紙上显著的吸附与解吸作用被记录的前部的迁移率为 10^{-3} 厘米²/秒·伏, 对于环己酮与糠醛来说亦记录到相似的阴离子迁移率.

在 40 伏/厘米及 100 分钟時間的条件下, 甲基异丁基酮中铀的自由电泳, 表明在阳极区域存在有铀. 延长时间, 只能导致阳极区域铀进一步地加浓, 而铀并不轉向阴极周围.

可以认为在这样的情况下钍至少有一部分是以在电场中不迁移的絡合阴离子存在着.

含有硝酸四丁基铵 (TBAN) 甲基异丁基酮相

在含有 TBAN 甲基异丁基酮中, 铀的自由电泳表明有 99.9% 的铀迁移至阳极^[4]. 在这种条件下, 分光光度测定表明有三硝基铀酰絡合物的存在.

在甲基异丁基酮中含 TBAN 浓度范围在 0.3M 至 10^{-2} M 时可得前部的阳极迁移率为 10^{-4} 厘米²/秒·伏. 在这种情况下没有显著的尾巴.

在 40 伏/厘米与 100 分钟的条件, 铀的自由电泳表明, 只在阳极区域有铀的存在.

含有 TBAN 的氯仿相

在有机介质中钍-TBAN 化合物的电泳是在氯仿中进行的 (初步实验已証明 Pu-TBAN 在 CCl_4 中的分配系数要比 Pu-TBAN 在 CHCl_3 中的小几个数量级, 因此 CCl_4 就不試驗了).

在 TBAN-甲基异丁基酮所选用的条件下, 阳极迁移率为 10^{-4} 厘米²/秒·伏, 而没有明显的尾巴. 不包括电渗的校正.

在 TBAN- CHCl_3 中铀的自由电泳, 給出清楚的阳极迁移.

在这些情况中可认为在有机相所含阴离子对生成大量的有机阳离子与硝基铯络合阴离子。实验的结果表示这些离子对部分地解离。

結 論

从以上情况可以看出, 铯与铀的有机络合物的解离度对于要用纸上电泳法来得出在甲基异丁基酮, 酮, CHCl_3 + TBAN, 甲基异丁基酮 + TBAN 中的肯定的迁移率来说是足够的了。在这种条件下于 TBP 中的迁移率是不能测定的。

为使此法能用于具有说明能力的迁移率测定上, 还必须做一些工作来解决吸着过程的影响等因素, 特别是用铯络合物在自由电泳中的准确迁移率的测定来校定此方法, 这就要使用足够数量的铯以使得从自由电泳仪中迁移路程的各点上所取来的少量液体样品可以用放射性测量法来测定。

参 考 文 献

- [1] McDonald H. J.: *Ionography* The Year Book Pub. Chicago, 1955.
- [2] McKay H. A. C.: *Tri-n-butyl phosphate as an extracting agent for the nitrates of the actinide elements* Proc. Int. Conf. At. Energy Geneva 1955, p/441.
- [3] Best G. F., McKay H. A. C., Woodgate P. R.: *Tri-n-butyl phosphate as an extracting solvent for inorganic nitrates. III. The plutonium nitrates.* J. Inorg. Nucl. Chem. 4, 315—20 (1957).
- [4] Kaplan L., Hildebrand R. A., Ader M.: *The trinitratouranyl ions in organic solvents* J. Inorg. Nucl. Chem. 2, 153—63 (1956)

〔沈劍涵譯〕

制造工艺对鈾的組織和性質的影响*

Сергеев Г. Я., Титова В. В., Николаева З. П.,

Каптельцев А. М., Колобнева Л. И.

引 言

在原子反应堆中,鈾的制品是在高温及复杂的应力条件下工作的。因此,研究与在反应堆内利用的条件相联系的鈾的組織和性質是一系列原子动力工程的中心問題之一。

在鑄造状态或在 γ -区塑性变形后,鈾是粗晶粒的、比較硬的,同时具有不高的強度(強度极限为 30—50 公斤/毫米²)和很低的塑性(延伸率——5%)。除此之外, α -鈾具有非常显明的物理和机械性質的各向异性。在輻照的作用下,形状的改变也为鈾的制品所固有。

因此,解决提高制品在反应堆中工作期限的問題是与在必要的方面解决鈾的結構和性質变化的任务相联。

人所共知,改变純金屬的結構和性質主要的是热处理、变形及随后的再結晶退火、合金化。所有这些方法通常也应用于鈾。

下面,叙述鑄造或热轧的鈾,經過热处理(淬火),以及經過变形和在 α -区的温度退火,組織及机械性質变化的某些研究結果。

I. 鑄造和热轧鈾的組織和机械性質

尺寸为 1.5—2 毫米的鑄造或热轧鈾的晶粒是由大小为 200—500 微米的亚晶粒(субзерно)組成(图 4a)。亚晶粒在結晶位向上的差別不超过 5—10°。

不同炉号鈾的机械性質(在 20—850° 温度范围内短时拉伸試驗确定的結果)列举于图 1。試驗用的試样是标准的圓柱形試样:工作部分的直径 5 毫米;工作部分的长度 25 毫米。強度极限和延伸率变化的范围很寬是由于各种炉号金属中杂质含量的变动所致。

随着温度在 α -区由 20° 提高到 670°,在塑性增长的同时強度降低了。应该指出,在 20—100° 的温度間隔內屢次观察到鈾的強度特性有反常的变化。強度极限的数值,随着温度由 20° 到 100° 的变化而增加,但是屈服极限的数值則降低了。

随着轉变到 β -相的温度区域,观察到強度极限的增加和塑性的降低。当轉变到 γ -区时发生了強度的急剧下降和塑性的增长。

在中子場內长期停留时,鈾的制品在应力的作用下发生变形。該应力是由于在制品內存在温度梯度及由于裂变的行为形成热峯的結果而产生。

这样,研究依赖于材料状态和試驗条件的鈾的抗蠕变性提供出一定的兴趣。

* 第二届和平利用原子能国际會議文献, A/CONF.15/P/2307, 苏联,原文:俄文。

鑄造或热轧鈾的蠕变是在 20—600° 的温度范围内各种不同的应力下研究的,試驗的时间在高温时相当于 700—1000 小时,而室温时小于 6000 小时。高温时蠕变是在净化过的氦气中研究的。所用的试样是标准的圆柱形试样:工作部分的直径为 10 ± 0.05 毫米;工作部分的长度为 100 毫米。

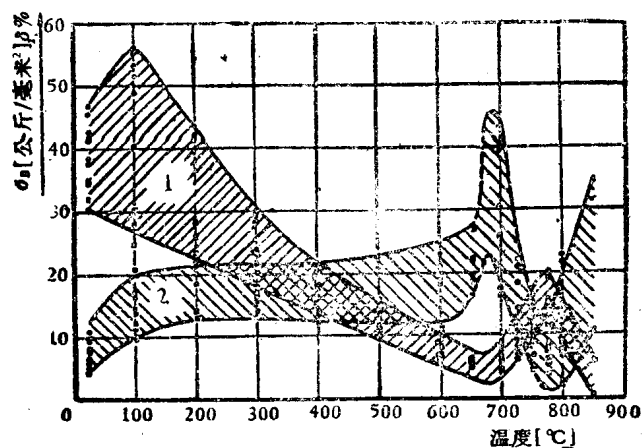


图1 温度对热轧鈾的机械性质的影响

試驗在氦气中进行。在用来进行研究的炉号的鈾内主要的杂质含量:
 $\text{Fe} = 5 \cdot 10^{-3} \sim 3 \cdot 10^{-2} \%$; $\text{Si} = 2 \cdot 10^{-3} \sim 4 \cdot 10^{-2} \%$; $\text{C} = 0.01 \sim 0.15 \%$
 1——强度极限 $[\sigma_B]$; 2——相对延伸率 $[\delta]$

在表1中列举出个别的蠕变試驗結果,而在图2上示出,在 20—600° 的温度范围内热轧鈾的蠕变速度与应力的关系。鈾的蠕变速度随着温度的升高,特别是当温度高于 400° 时急剧地增加。

表1 鈾的抗蠕变性与温度及应力的关系

試驗温度 (°C)	应力 σ (公斤/毫米 ²)	加载瞬間内 的变形 ($\epsilon_0 \%$)	蠕变速度 ($\nu \%$ /小时)	測量蠕变速度 的間隔(小时)	总的蠕变变形		附 注
					時間(小时)	$\epsilon \%$	
20	25	0.70	$2.3 \cdot 10^{-5}$	1100—3300	3300	1.12	试样未断裂
100	20	0.88	$7.3 \cdot 10^{-5}$	560—1050	1050	1.28	„
200	18	0.49	$2.7 \cdot 10^{-5}$	360—820	820	0.63	„
300	18	0.58	$1.0 \cdot 10^{-4}$	200—815	815	0.81	„
400	10	0.15	$6.1 \cdot 10^{-4}$	300—735	735	0.70	„
500	3	0.05	$1.1 \cdot 10^{-3}$	275—750	800	1.05	„
600	1	0.02	$2.0 \cdot 10^{-3}$	25—150	850	3.15	„

II. 热处理时鈾的組織和机械性质的变化

在我們的研究中,鈾的热处理的主要形式是有条件地称为淬火的操作。它是通过把金属加热到 β -或 γ -相的温度及随后在水或油中很快的冷却来实现的。在这种情况下,术语“淬火”应该认为是有条件的,因为当普通純度的鈾这样热处理时,既未把高温相也未把过渡相固定到室温。

但是,淬火使得鈾的組織和性质急剧改变。

机械性质与淬火条件(加热温度,冷却速度)的关系,以及加热时淬火金属的性质稳定

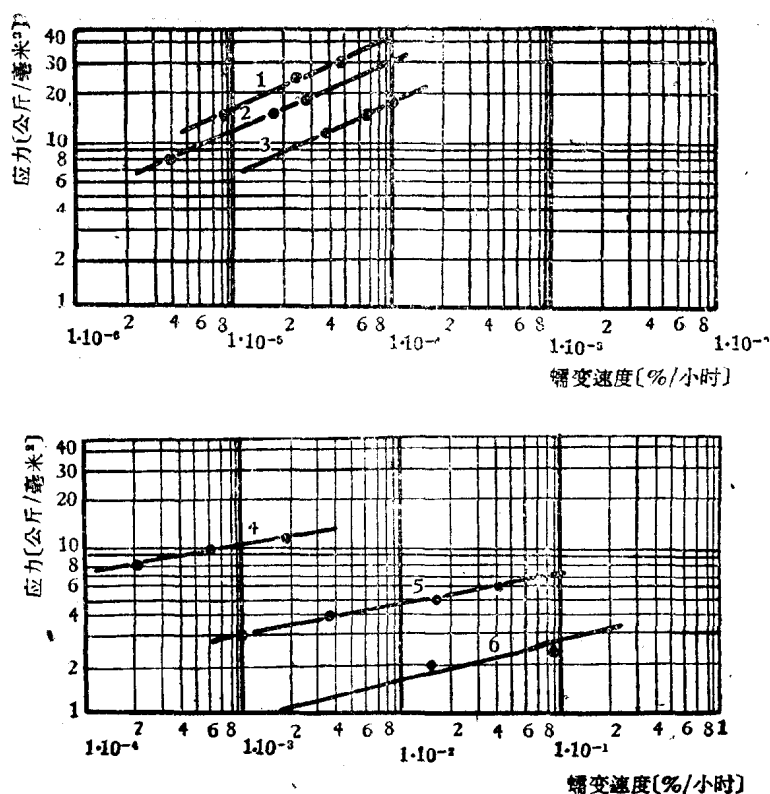


图2 热轧铀蠕变速度的变化与温度和应力的关系

铀内主要杂质的含量:

$\text{Fe} = 4.8 \cdot 10^{-3}\%$; $\text{Si} = 1.4 \cdot 10^{-3}\%$; $\text{Ni} = 1.8 \cdot 10^{-4}\%$; $\text{C} = 0.01\%$

1—试验温度——20°; 2—试验温度——200°; 3—试验温度——300°;
4—试验温度——400°; 5—试验温度——500°; 6—试验温度——600°

性曾被确定。

1. 铀的机械性质依赖于淬火条件的变化

从 β -及 γ -相的温度淬火使得金属的组织急剧地改变,并且显著地提高了在相应的温度范围内短时试验和长期试验时确定的强度特性(图3)。由 γ -区淬火后,观察到强度极限和屈服极限发生最大的变化(大约为室温时的60%)。这时,塑性特性改变很小。

图4说明淬火时铀的组织的变化。可以看到铀的晶粒显著的细化,并且晶粒细化的程度,与淬火铀的强度特性一样,决定于金属的化学成分及杂质,首先是铁、硅、镍、铝的含量(图5和6)。

曾确定,在淬火过程中冷却速度对淬火金属的性质有重要的影响。图7说明铸造的铀从 γ -区淬入水中性质的变化,水的温度在 20° 到 100° 之间变化。

当在各种不同的冷却剂中淬火时机械性质有类似的变化。这样,具有强度极限 38 公斤/毫米²的热轧铀,从 950° (停留 30 分钟) 在水中淬火后强度极限的数值等于 64 公斤/毫米²,在油中淬火后为 45 公斤/毫米²,而在氩气流中淬火后为 40 公斤/毫米²。

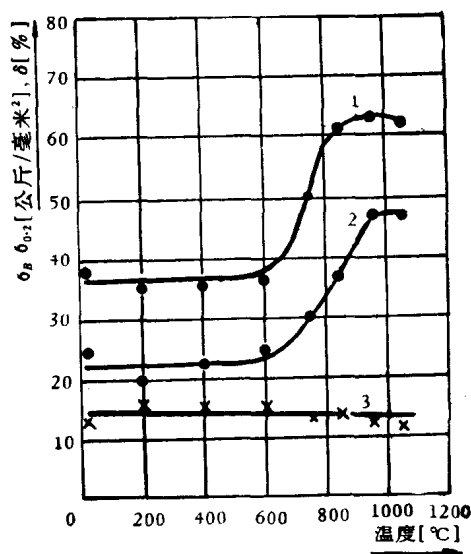


图3 热轧铀的机械性质的变化与淬火温度的关系。
 淬火前持续时间 30 分钟；在油中冷却
 铀内主要杂质的含量：
 $\text{Fe} = 7 \cdot 10^{-3}\%$ ； $\text{Si} = 1.2 \cdot 10^{-3}\%$ ； $\text{C} = 0.04\%$
 1——强度极限—— σ_B [公斤/毫米²]；
 2——条件屈服极限—— $\sigma_{0.2}$ [公斤/毫米²]；
 3——相对延伸率—— δ [%]

2. 加热时淬火铀机械性质的变化

对于从 β -和 γ -区淬火的铀，强度特性的数值随着温度的提高而逐渐降低，但是在 α -区的所有温度仍旧比未淬火的铀在相应的温度时同一的特性为大(图 8)。

淬火铀的蠕变试验结果使有可能确定，与铸造或热轧金属的抗蠕变性相比，由 β -和 γ -区淬火在温度低于 400° 时提高铀的抗蠕变性，而当更高的温度时则降低它(参看表 2)。

在图 9 上列举出热轧和从 β -及 γ -区淬火的铀在 300° (a) 和 500° (б) 时得到的初期蠕变曲线，而在图 10 上指出了热轧的铀及同一炉号铀从 β -和 γ -相淬火后在 500° 时蠕变速度依赖于应力的变化。

当温度高于 300° 时，在变形过程中沿晶粒间界流动起显著的作用。因此具有较大间界表面的细晶体淬火金属的变形比粗晶粒的铸造或热轧铀的变形更为容易。低温时，已经知道，变形基本上是通过孪晶^[1]实现的，因此用淬火强化了细晶体铀具有很大的变形抗力。

文献[2]中指出， 400° 时与未淬火的铀相比，淬火的铀具有较小的抗蠕变性。

曾确定，淬火提高了急剧加速蠕变的温度间隔达 $30-40^\circ$ 。这样，对于热轧的铀加速蠕变的开始区域位于 $300-350^\circ$ 的温度间隔内，而对于淬火的在 $350-375^\circ\text{C}$ 的间隔内(图 18)。

在图 11 上列举出淬火铀的机械性质随回火温度的变化图。

在 α -区的温度回火后，淬火铀保持高的强度极限和屈服极限的数值。仅仅在加热到

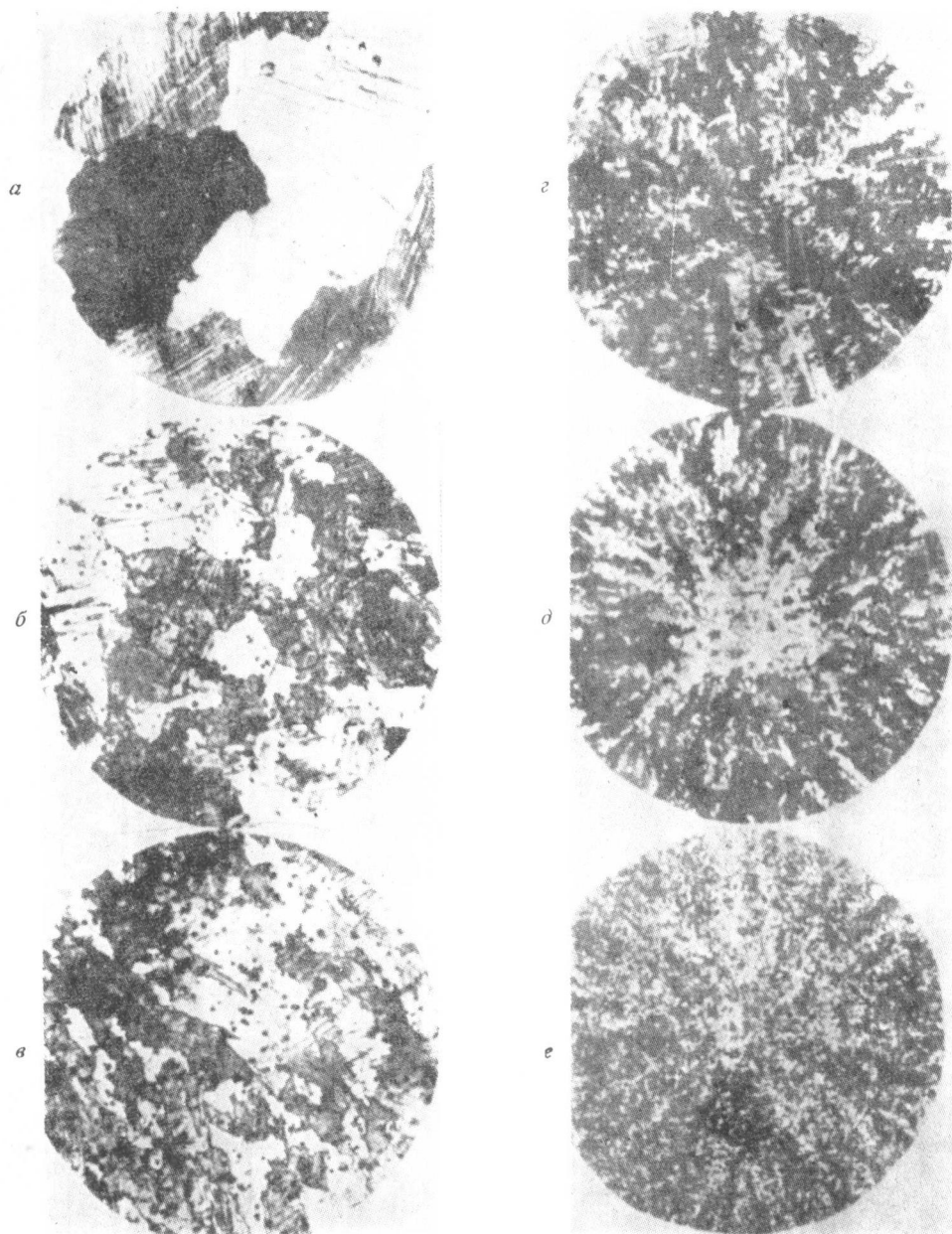


图4 淬火时鈷的組織变化

a——鑄造鈷的显微組織。鉄硅鋁的总含量 $1.5 \cdot 10^{-2}\%$ $\times 70$; б——由 γ -相淬火的鈷的显微組織。鉄硅鋁的总含量 $5 \cdot 10^{-2}\%$ $\times 135$; в——由 γ -相淬火的鈷的显微組織。鉄硅鋁的总含量 $1 \cdot 10^{-1}\%$ $\times 135$; г, д, е——相应为 a, б, в 試样的宏观組織 $\times 2$