

钹手册

212 科技图书馆《钹手册》翻译组

1972

第20章 钚燃料的辐照性能

用钚作为热中子和快中子两类动力反应堆燃料的工作正在进行。但是，含钚燃料元件的发展与钚燃料反应堆的潜在能力不相适应。由于认识到充分利用世界核燃料资源的重要性，最近加速了钚燃料的研究活动。

在各种不同类型的燃料循环中，热中子反应堆可以采用不同方案。一种类型是用天然铀作燃料的自持钚再循环，使加浓反应堆的运行可以不需要同位素分离装置^[1、2]。据估计，由于采用了钚的再循环，可使铀的燃耗增加50—60%。另一种类型，热中子反应堆中的钚加浓是将钚在再生燃料中均匀弥散，或者是将钚弥散在不再生的稀释体内构成单独的加浓细棒（spike）元件。每种方案各有其优缺点，这取决于反应堆的结构。通常，热中子反应堆燃料的钚加浓限于较稀的浓度（对均匀加浓燃料可达3%；对加浓细棒燃料可达10%）。在热中子反应堆中，金属和陶瓷两类燃料系统都是令人感兴趣的。

在快中子反应堆中，钚每吸收一个中子释放出来的中子数大于任何其它裂变材料。因此钚燃料快中子反应堆具有最佳的增殖能力^[3、4]。同时，快中子反应堆中裂变钚的临界质量大约只有 U^{235} 的三分之二。钚燃料快中子反应堆的小得多的临界质量，对于减轻移动式反应堆的重量，尤其是作为在空间飞行中应用的火箭发动机或宇宙飞船的动力具有很大的优越性^[5-7]。由于快中子反应堆活性区单位体积功率密度很高，所以，燃料元件通常都做成小直径细棒，并在高比功率下运行。对于钚均匀弥散在再生材料内的快中子增殖反应堆燃料，钚的含量在20%的范围内是有利的。钚— U^{238} 燃料循环有高的增殖比。金属、氧化物和碳化物的燃料系统都在发展中。每种燃料系统都有其优点和缺点。

钚同位素有良好的核性能，因此有可能建造紧凑的装钚燃料中能中子动力反应堆。由照射同位素 Pu^{240} 产生可裂变 Pu^{241} 的最佳形式，可能提供平坦的反应性变化，而不需要加可燃吸收体^[8-11]。钚的这种特征是“菲尼克斯”（Phoenix）燃料设计的基础。按菲尼克斯作用的最佳条件设计的燃料元件，设想是由分离的钚颗粒（ PuO_2 或 PuC ）以适当的同位素组份弥散在一种具有高导热率的惰性金属基体内所构成。由于弥散燃料具有良好的导热率，因此可以在同样的燃料温度下得到高功率密度（在700瓦/厘米³左右）。弥散燃料也有“菲尼克斯”燃料在高燃耗（ 10×10^{20} 裂变/厘米³）下所需要的良好的辐照稳定性。

本文摘要介绍和在一定程度上综合评述了至今为止的含钚燃料元件的辐照结果。正在研究的有前途的含钚燃料材料远远超出已做过辐照试验的数量。钚燃料材料辐照前的性能、燃料制备的详情、以及对正在进行的工作或者将来工作规划的讨论，大部分没有纳入本章。本文，仅着重讨论钚燃料辐照试验的结果。许多资料已在过去发表过，此处做了某些必要的重复。虽然作者力图在文中反映出最新的研究成果，但是必须看到，钚燃料的辐照资料正陆续大量发表，以致仍难于达到这个要求。

20—1 钷燃料反应堆发展史

已经建成了七个装载钷燃料元件的反应堆。洛斯-阿拉莫斯克 莱 门 丁 (Clementine) 快中子反应堆 (热功率25瓩) 是第一个完全用钷作燃料的反应堆, 它在1948年达到临界。在苏联, 已建成两个以钷作燃料的实验性快中子反应堆: 苏维埃增殖堆 BR-2 (SBR-2, 热功率200瓩) 在1956年达到临界; 较大的 SBR-5 (热功率5兆瓦) 在1958年达到临界。1958年, 在爱达荷州爱德荷福尔斯 (Idaho Falls) 国立反应堆试验站装载含钷燃料元件的热中子材料试验反应堆 (MTRE, 热功率40兆瓦) 成功地投入了运行。洛斯-阿拉莫斯克钷快中子实验堆 (热功率1兆瓦) 使用液态钷-铁合金作燃料, 在1961年达到临界。实验性增殖反应堆-I (EBR-I) 自1962年11月起用钷-1.25% (重量) 铝作堆芯元件运行。预计装载这批燃料能发出的最大功率可达1.8千瓦(电)。在此以后, 曾于1960年12月首次达到临界的汉福特热中子钷再循环试验反应堆 PRTR (热功率70兆瓦), 在1963年11月活性区满载含钷燃料元件 (铝-钷和 UO_2-PuO_2) 投入生产。至今, 对于用钷加浓的堆芯而言, 这是输出功率最高的 (增加将近2倍)。

在乔克河 (Chalk River) 国家研究实验堆 (NRX) 内为了加浓而部分装载了含钷燃料。为了支持钷利用规划, 在活性区的中心装载 UO_2-PuO_2 燃料的实验性沸水反应堆 (E-BWR) 将在1964年中期开始运转。萨克斯顿河湾反应堆 (Saxton Hook-on Reactor) 也计划部分装载含钷燃料。

将来, 钷燃料反应堆的数量必然要增多。正在建造的美国快中子陶瓷实验性反应堆、法国的拉普索迪 (Rapsodie) 反应堆和英国的快中子原型堆均证实了这一点。钷燃料反应堆的建造是充分利用世界核能资源的一个重要组成部分。

20—2 含钷合金燃料的辐照

20—2.1 纯钷的辐照

第一个用钷燃料的反应堆是25瓩的洛斯-阿拉莫斯克 莱 门 丁快中子反应堆^[12], 它于1949年3月开始满功率运行。克 莱 门 丁是汞冷却的快中子非均匀研究堆, 用以考查用钷作小型反应堆燃料的可能性。这个反应堆的第一个活性区是由天然铀棒围起来的35根含钷的燃料棒组成, 但在第二次装料时没有采用铀棒作反射层。

钷燃料芯棒 (直径1.65厘米, 长14厘米) 是经过铸造和机械加工的 δ 相稳定钷, 表面镀以0.008厘米厚的镍层, 然后装进0.051厘米厚的软钢套里。大约运行了21个月之后, 含钷燃料棒已相当明显地破裂了, 致使钷向汞冷却剂中泄漏^[13]。1952年12月运行结束, 到1953年6月反应堆全部拆除。燃料的最高温度限定为约170℃。由于比功率低, 所以燃料在反应堆全部运行期间的燃耗是可以忽略不计的。

对辐照后的钷燃料元件仅进行了少量的检查^[14]。发现有一个燃料元件的钢包壳在

焊接部位破损。汞穿透引起包壳开裂,估计有1到10克的铀泄漏到冷却剂里。其它燃料元件的镍层和铀芯棒的表面上发现有小裂纹。在某些元件中估计铀的密度增高2%,据推断,密度的增高可能是因辐照导致稳定的 δ 相部分地回复到更为致密的 α 相所引起的。

20-2.2 铝-铀合金燃料的辐照性能

铝-铀合金燃料元件在低压和高压高温两类反应堆中,经过长时间的照射,表现出良好的辐照性能。照射过的铝-铀燃料元件(含铀直至重量的20%)比任何其它含铀的燃料元件都多。由于铀在铝中的固溶度低,铀是以化合物 PuAl_4 的形式弥散在纯铝的基体内——一种理想的基体燃料。铝-铀用作热中子反应堆燃料是引人注意的,因为它有如下特点:热中子寄生吸收截面低,长期辐照稳定性好,易于制备从而减少了铀的污染问题,以及良好的导热率。而且,只要加入少量的镍和硅,还可以获得良好的抗热水腐蚀性能。至今为止,它的低熔点还没有成为这种燃料应用上的严重限制。乔克河NRX反应堆采用了铝-铀燃料元件(含6公斤铀的24根元件)作为加浓和生产含有较富重同位素的铀^[15]。材料试验堆(MTR)曾经在整个活性区都装载铀-铝板状燃料元件^[16,17]。为了生产少量的超铀元素,萨凡那河(Savanna River)反应堆使用了相当数量的铝-铀元件(含铀约12公斤的144根元件)^[18]。最近,在汉福特的铀再循环试验反应堆(PRTR)里使用了含铀将近20公斤的75根铝包壳的铝-铀元件^[19,20]。

(a) **铝包壳的铝-铀合金燃料** 为了加浓反应堆燃料和生产重同位素,在NRX反应堆上使用了铝包壳的铝-铀合金燃料^[15,21]。在NRX反应堆里试验了两种基本类型的燃料棒结构。第一种类型是双层包壳的铝-铀合金,构成长300厘米的组元件,含铀量沿轴向约成正弦平方分布。第二种类型是单层包壳的,它由经过铸造和机械加工的成分均匀的铝-铀合金块垒积而成,这种类型后来取代了第一种类型。在这两种燃料棒的结构中,外部铝包壳都是拉制的圆管。在这个反应堆中共使用了含铀约10公斤的32根元件(直径3.85厘米,长300厘米)。双层包壳的燃料元件中,铀在铝中的组分在0.5到20.8%(重量)之间。改进为单层包壳的合金燃料棒则装有含铀3.7%(重量)的铝-铀合金。双层包壳元件在最大表面热通量315瓦/厘米²下运行,平均燃耗高达铀的55到60%。在辐照时,由于芯棒和包壳间的热松脱使21根双层包壳燃料元件有5根元件发生变形。有1根棒严重破损,破损是由于水冷却剂穿透外包壳引起的,但是没有裂变产物释出。外部和内部包壳之间传热的变坏引起燃料温度过高和芯棒熔化,从而造成元件的破损和引起反应堆的严重事故。单层包壳燃料元件消除了铝-铀间的界面,运行情况良好,在最大表面热通量为190瓦/厘米²的情况下没有破损。

为了在MTR反应堆上通过照射生产少量的镱和铈元素,阿贡国立实验室和洛斯-阿拉莫斯科学实验室共同制作了含铝-5%(重量)铀和铝-10%(重量)铀合金的轧制包壳样品^[22]。被称为“餐巾圈”的轧制包壳开口管状样品,外直径为3.18厘米,长5.1厘米,总的壁厚1.52毫米。在MTR反应堆内,在燃料温度低于100℃的条件下,成功地辐照了含铀10%和5%(重量)的这些样品,燃耗分别高达铀原子数的76%和90%^[23]。这些铝包壳样品经辐照后退火得知,肿胀的起始温度是在525到550℃的范围内。

洛斯-阿拉莫斯科学实验室和橡树岭国立实验室在1955年联合制造了6个装着铝-10%(重量)钷合金芯棒的MTR燃料元件组合件,供在MTR反应堆上照射以生产少量的重同位素^[24,25]。在1958年,MTR反应堆活性区满载汉福特制造的元件(装有铝-14%(重量)钷合金的芯棒)投入运行^[16]。在元件制造的过程中采用了滚压技术使铝包壳和芯棒之间得到冶金结合。这些元件一直运行到最大燃耗达初始可裂变原子数的75%时都没有破损。

为了生产少量的超钷元素,在萨凡那河反应堆上照射了由汉福特制造的含钷12公斤的144根铝-7.35%(重量)钷燃料棒(直径2.5厘米,长152厘米)^[16]。用共挤压方法使铝包壳和芯棒结合。这些元件使用情况良好,燃耗达到了初始可裂变原子数的100%都没有破损。

(b) **钷合金包壳的铝-钷合金燃料** 为了支持钷再循环规划,1957年在汉福特开始了用于加压水冷动力堆的钷合金包壳铝-钷合金燃料元件的研究工作^[16,26-29]。在乔克河也研究过钷合金包壳的铝-钷合金燃料,用来估价它作为水冷反应堆燃料的可能性^[30-32]。钷合金的热中子俘获截面低,有良好的抗腐蚀性能和强度,使它适于作铝-钷合金燃料的包壳材料。铝-钷燃料芯体和钷合金包壳之间的扩散结合在热循环的过程中破坏了,这是由于相差四倍的热膨胀而产生的过大应力所引起的。由于芯体比包壳的膨胀大,因而控制它们之间的径向间隙使其相互接触,这样在运行期间就可以减少芯体和包壳之间的温差。这种由于热膨胀不同引起相对移动从而导致芯体和包壳之间的相互作用,乃是这种燃料结构的一个主要问题(但并不是不能解决的)。

(1) **铝-钷在汉福特的辐照** 表20.1扼要地介绍了在汉福特进行的钷合金包壳铝-钷合金燃料的辐照实验。其中包括在各种不同条件下,装有不同芯体材料的钷合金包壳燃料盒(外直径1.45厘米、长5.1厘米、包壳厚度为0.75毫米)的辐照试验和PRTR原型组件实验。PRTR原型组件实验是由长25到107厘米、装有不同芯体材料、外直径为1.45厘米的钷合金包壳燃料棒组成。在燃料盒与组件的两类实验中,采用了0.08到0.25毫米的芯体与包壳之间的直径间隙,以确定不同间隙尺寸的影响。燃料盒实验是用于研究与元件结构无关的燃料参数。而燃料组件实验是用来评价原型的PRTR几何条件,以达到特定的目的。表20.1列出的全部燃料盒和燃料组件实验进行情况良好,没有发生破损。

没有结合层的铝-钷芯体装在钷合金包壳燃料盒内的辐照结果,可以定性地评价辐照对芯体材料的某些影响^[28]。由于加入少量的镍和(或)硅提高了铝-钷合金在热水(350℃)中的腐蚀抗力,同时也研究了这些燃料的辐照性能^[33]。

对钷含量在1.65到20%(重量)之间变化的铝-钷和铝-12%(重量)硅-钷合金的辐照性能作了比较^[8]。列于表20.1中24个元件的一组试验内,有三个燃料盒在辐照期间发生了断续的芯体向包壳的扩散结合。最高的辐照温度(估计温度在330到520℃之间)不足以引起铝-钷和铝-硅-钷合金发生重大的显微组织变化。较小的燃料盒没有明显的外形尺寸变化。但是,在较大的组件实验中,芯体和包壳之间相互作用的影响却是比较明显的。芯体与包壳之间的相互作用和包壳的束缚作用对于体积变化的影响程度,现在还不清楚。如图20.1所示,按照尺寸和密度测量所确定的体积变化大小的结果表明,

表20.1 试验铝-铀PRTR反应堆加液燃料元件结构设计的辐照试验一览表(1)

元件数	类型 长度, 厘米	试验目的	芯体材料 %(重量)	最大照射 裂变/厘米 $\times 10^{20}$	铀的最大燃耗 %	冷却剂温度 ℃	最大热通量 瓦/厘米 2
24	燃料盒 6.4(MTR)*	验证试验 不同芯体材料	Al-Pu和 Al-Si-Pu (1.65~20Pu)	0.32-1.05	58	46	104.0 378.0
2	燃料盒 9.2(MTR)	注射铸造	Al-2.1Pu-2.0Ni	0.32	50	46	186.0
3	燃料盒 12(MTR)	反应性试验	Al-3Pu (6-27%Pu 240)	1.40	92	46	315.0
1	19棒组件 107(ETR) [†]	PRTR原型	Al-0.5Pu	0.09	36	240	78.8
1	7棒组件 107(ETR)	PRTR原型	Al-1.3Pu	0.13	14	240	82.0
1	7棒组件 107(ETR)	热循环	Al-2.0Ni-1.0Pu	0.10	17	280	52.6
1	7棒组件 74(ETR)	故意破损	Al-2Ni-2.3Pu	0.19	14	260	101.0
1	7棒组件 107(ETR)	注射铸造	Al-2Ni-2.5Pu	0.29	20	260	146.0
1	7棒组件 71(KER) [‡]	PRTR原型	Al-1.8Pu	— [‡]	—	310	—
1	4棒组件 25(KER)	PRTR原型 大间隙	Al-8Pu Al-3.1Pu	—	—	210 46	— 205.0
3	3棒组件 28(MTR)	石墨润滑芯体; 芯体材料	Al-3.2Pu 1.35Ni-1.1Si	0.51	26		

* MTR—材料试验堆

† ETR—工程试验堆

‡ KER—堆内回路装置

§ 破折号表示数据未公布

在344到455℃的温度范围内, 铝-钷合金的抗变形能力大于相同钷含量的铝-硅-钷合金(近于2倍)。铝-钷和铝-硅-钷两类合金抗变形的能力, 均随钷含量的增加而增加。

同样, 其它的数据表明, 对于铝-钷和铝-硅-钷这两类合金, 燃料芯体体积变化的百分数有随燃料芯体温度的增高而增加的趋势, 而且增加的百分数对燃料温度比对燃耗更敏感。硬度数据是难以进行比较的, 不过已经观察到, 象预料的那样, 硬度通常随辐照而增高。硬度增高率随着燃耗的加深而减少。

在燃料盒和燃料组件实验中, 用熔化了了的铝-钷-镍合金直接注入钨合金包壳内所形成的芯体和包壳之间的冶金结合, 在辐照期间遭到破坏^(8,4)。然而这个偶然事件无损于结果良好的元件辐照性能, 因而这种工艺对将来的元件制造仍有一定的吸引力。

为了达到特定的目的, 曾对PRTR原型燃料组件做过辐照试验⁽¹⁹⁾。较多的PRTR原型燃料组件的辐照结果表明, 燃料盒试验辐照效应并不明显。在堆内热循环时芯体和包壳的相互作用引起了燃料棒的缩短。单根燃料棒发现有一定程度的弯曲, 而燃料组件并未弯曲。通过增加径向间隙能够减少芯体和包壳之间的相互作用。直径间隙大到0.25毫米的元件成功地经受了辐照, 这表明间隙大小有自调节的倾向, 因而有理由认为, 控制很小的间隙可能是没有必要的。按螺旋形缠绕在燃料棒上的间隔线在辐照后松弛证实了燃料棒的缩短。这种燃料棒缩短的机理尚不完全清楚, 这是因为, 既然没有观察到棒间相对移动的形迹, 那么在运行期间的热膨胀应使金属线束紧, 这与实际上金属线的松弛是相矛盾的。

铝-2.3%(重量)钷-2.0%(重量)镍芯体的钨-2合金(低镍)包壳元件在堆内进行缺陷试验时, 尽管在元件损伤后还运行了48个小时, 也只有少量的放射性裂变产物逸散到

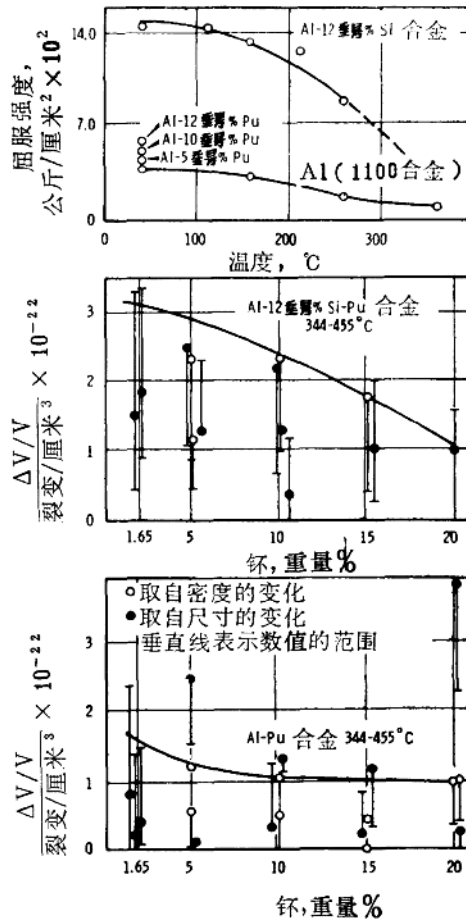


图20.1 在344到455℃的温度范围内, 铝-钷和铝-硅-钷的芯体体积变化与应变/厘米³的比值与钷浓度的关系曲线^(2,8)

冷却剂里。并没有发现元件进水的痕迹。

(2) 汉福特 PRTR 堆的铝-铀实验 75个铝-铀加浓细棒燃料元件在铀再循环试验堆(PRTR)内进行了辐照, 最大平均燃耗为初始可裂变原子数的65% (0.8×10^{20} 裂变/厘米³), 相当于中心最大燃耗为初始可裂变原子数的87% (1.1×10^{20} 裂变/厘米³)。每个燃料元件的外直径为8.25厘米, 长为250厘米, 它由19根单棒组成。单棒是由热挤压整段的铝-铀-铀合金芯棒(直径1.27厘米, 长224厘米)装在低镍的锆-2合金包壳(壁厚0.76毫米)里制成的^[10, 20](图20.2)。芯棒与包壳之间没有结合。在燃料棒表面上呈螺旋形缠绕的金属线使棒与棒之间造成适当的间距, 在周围用绑带把19个燃料棒绑在一起形成一个组件。每个元件约含铀270克。

PRTR堆的最大单管功率为1200瓩, 相当于最大的燃料棒功率394瓦/厘米(87瓦/厘米²), 相应的芯棒最高温度为400℃。在辐照期间燃料棒逐渐缩短, 使螺旋形缠绕在棒上的金属线发生松弛。虽然芯棒和包壳之间的相互作用还不明了, 但是若干棒出现了0.3%的最大缩短率。这一缩短率是在辐照了大约150兆瓦日后测得的, 这相当于元件照射预定指标的2倍。由于燃料棒缩短而引起的金属线松弛并没有影响燃料元件的性能, 亦未观察到棒间相对移动的迹象。不过可以认为, 在运行温度下由于热膨胀效应金属线应该束紧。虽然芯棒和包壳之间相互作用的机理还不十分清楚, 但是, 增加芯棒和包壳之间的径向间隙却成功地减弱了这种作用。在PRTR堆内成功地照射了三个锆-2合金包壳的未经压热处理的铝-铀燃料元件, 结果表明在堆内使用期间锆包壳表面上能够形成一种均匀的黑色锆氧化膜。

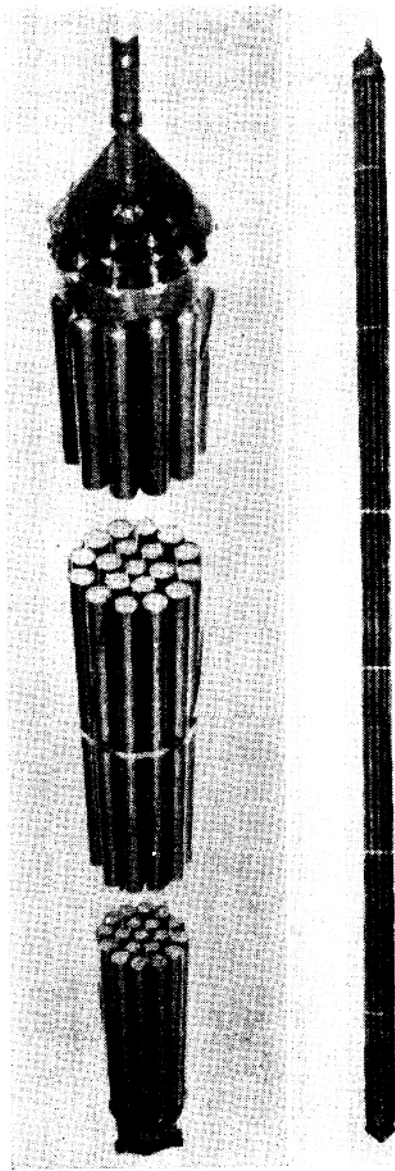


图20.2 铀再循环试验堆的19根棒组件燃料元件, 直径8.26厘米, 长251厘米。燃料棒装有铝-铀合金或 $\text{UO}_2 - \text{PuO}_2$, 采用锆合金包壳, 并且不分段。芯棒的有效长度为224厘米。

在1500根铝-铀燃料棒中,有3根棒在辐照期间发现破损。这些棒破损的原因还不清楚,但是没有大量的裂变产物释放到冷却剂里,也没有引起反应堆运行的任何异常问题。

一个在PRTR堆活性区内照射到平均燃耗达 0.3×10^{20} 裂变/厘米² 之后破损了的铝-铀加浓细棒燃料元件,又把它放到水冷的(压力7.38公斤/厘米², 250℃)燃料元件破损试验装置(FERTF)内照射406个小时^[35],辐照后检查发现在破损部位铝合金包壳严重破裂和氧化,但是只引起了较小的肿胀(图20.3)。浸蚀掉芯棒的腐蚀产物之后,显示出芯棒有局部晶间腐蚀的某些迹象。虽然,可以从芯棒的晶间腐蚀证明在没有结合的芯

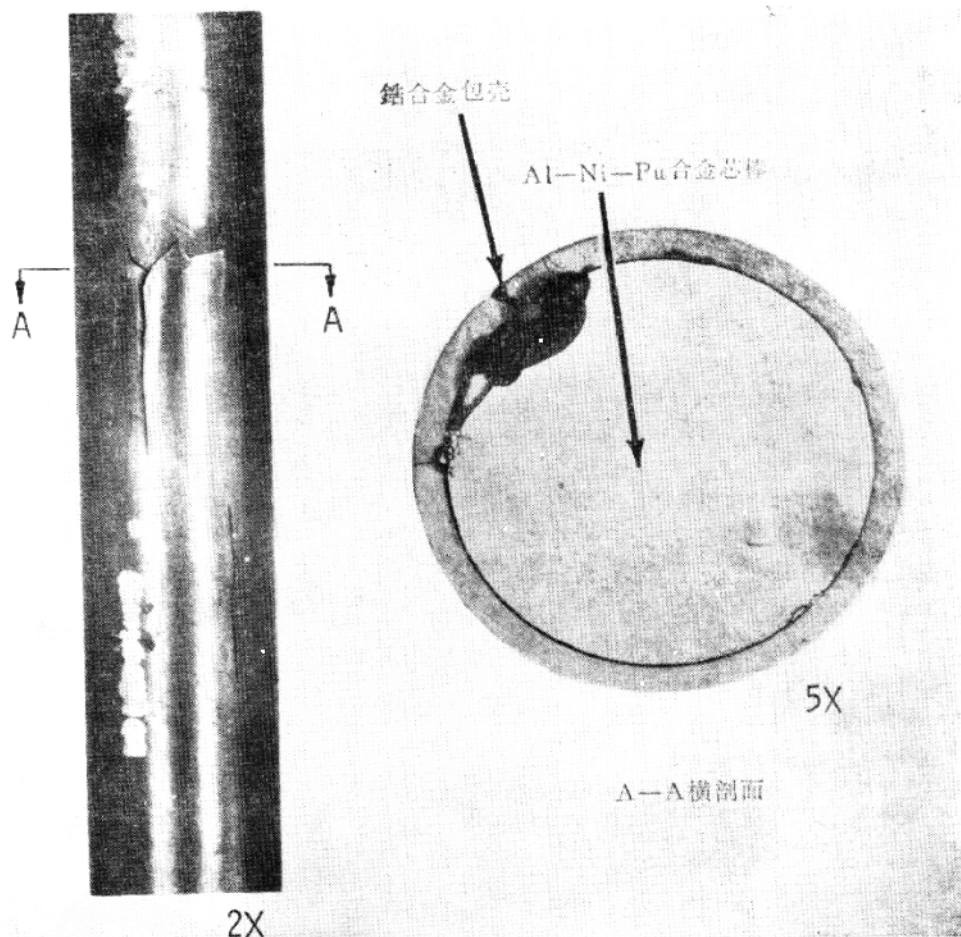


图20.3 一个有缺陷的铀再循环试验堆(PRTR)铝-铀加浓细棒元件燃料棒包壳的破损。在缺陷部位,铝合金包壳有大片的水蚀痕迹和较小的肿胀。在燃料元件破损试验装置里照射了406个小时,只有约0.1厘米³的芯棒材料逸散到250℃的冷却剂里。

棒和包壳的间隙里有水存在,但是却没有水浸的痕迹。对释出放射性的监测表明,在元件放在回路内的期间,大约有4毫克(0.1厘米^3)合金燃料中的铀释放到冷却剂里。冷却剂里的裂变产物比例表明,释出的机理主要是裂变碎片的反冲。元件在回路里辐照的初始阶段具有稳定的放射性释出率,但这并没有妨碍它的继续运行。这就证明了,在动力堆的运行条件下,没有结合的锆合金包壳与芯棒组成的铝-铀加浓细棒燃料元件具有令人满意的破损特性。

(3) 乔克河反应堆的铝-铀实验 在乔克河,研究了含有5、10、15和20%(重量)铀并用锆-2合金作包壳的铸造铝-铀合金^[30-32]。除了燃料材料在辐照前进行过广泛的研究外,还辐照了十个铝-铀样品。辐照时的芯棒温度估计为350到625℃,铀燃耗为7到20%。辐照试验的主要目的是确定燃料组合件的尺寸稳定性。辐照样品是长8.4厘米、直径0.915厘米的铝-铀芯棒,包封在0.76毫米厚的锆-2合金包壳里。制备了不同径向间隙的样品用以考察高于正常芯棒温度时的辐照效应。表20.2给出这十个燃料盒的辐照参数。

辐照过的样品没有明显的尺寸变化。在低温和高温两类样品里,芯棒和包壳均发生断续的结合。在一个径向间隙大的试样(B20)里,芯棒有局部熔化的迹象。虽然这点将表明间隙大小的上限,但是其它组合件的良好性能表明,对尺寸公差要求过严是没有必要的。

辐照的结果使芯棒硬度增加,为达到辐照前的硬度值,需于辐照后在630℃退火1小时。

为了研究燃耗、辐照温度和辐照后的退火对束缚的、部分束缚的和无束缚的样品的影响,采用了浸液密度测量法(图20.4)。肿胀的程度随着辐照温度和(或)燃耗的增加而增长。从辐照后的退火实验得知,肿胀的起始温度为640到650℃,这个温度比“餐巾圈”样品在辐照后退火所得到的起始温度约高100℃^[23]。“餐巾圈”样品的较多燃耗和随之而来的较大的裂变气体原子浓度可能使肿胀的起始温度降低。具有较大直径间隙的试样在辐照期间芯棒温度高达550到625℃,这个温度足以引起共晶组织的球状化。

一般来说,从以上这些试验可以看到,锆-2合金包壳的铝-铀合金燃料元件是一种适用于水冷动力反应堆的良好元件。

(c) 不锈钢包壳的铝-铀合金燃料 为了研究在严格控制表面温度、冷却剂流速和 β 射线流的条件下燃料表面薄膜的形成速率,在乔克河反应堆的一个有机物冷却的回路里照射了七根用0.254毫米厚不锈钢包壳的铝-铀合金燃料棒(铀的含量从2.01到10.43%(重量))^[36]。辐照试验还提供了关于芯棒材料辐照稳定性和芯棒与包壳之间适应性方面的资料。

燃料棒有两种结构:一种是把裂变合金做成一个圆筒,其外是不锈钢包壳;另一种结构是裂变合金做成棒状,用铝管套起来,装在不锈钢包壳里。第一种结构在包壳和冷却剂界面上引起较大的 β 通量。两种类型具有相同的外尺寸:外直径1.27厘米,长21.6厘米。测出芯棒中心的最高温度在400到530℃之间,燃耗为初始铀原子数的2.4到5.9%(裂变了总原子数的0.05到0.54%)。

这些燃料棒在辐照后的直观检查中没有发现任何变形。芯棒的直径和长度的测量表

表20.2 锆-2合金包壳铝-钷样品在乔克河反应堆辐照时的燃料元件温度、热流和平均燃料消耗的估计值^[32]

样 品 标 记	A5	A10	A15	A20	B5	B10	B15	B20	C10	C20	精 确 度
钷含量, %(重量)	5.66	10.42	15.30	20.53	5.66	12.93	15.30	20.53	12.93	10.42	±1.5%
钷含量, %(原子)	0.67	1.30	2.00	2.84	0.67	1.65	2.00	2.84	1.65	1.30	±1.5%
室温下芯棒和包壳的直径间隙(测量值), 毫米	0.55	0.061	0.051	0.061	0.264	0.208	0.152	0.157	0.041	0.046	±1×10 ⁻³ 毫米
辐照期间芯棒的中心温度(估计值), °C*	350	400	400	400	625	625	550	600	400	400	±25°C
包壳表面的热流, (估计值), 瓦/厘米**	80	140	155	130	90	170	130	120	150	130	±20%
钷的燃料消耗(测量值), %	18.7	16.0	12.4	7.5	20.1	16.2	9.7	7.0	13.8	15.4	
总的裂变原子百分数, %	0.13	0.21	0.25	0.21	0.14	0.27	0.19	0.20	0.23	0.20	

* B组试样的估计中心温度仅适用于假定辐照期间燃料不发生肿胀。辐照后的测量发现, 发生了肿胀, 因而芯棒温度是逐渐降低的。样品B10和B20的肿胀在辐照期间的某一阶段足以使它它与包壳接触。

表20.3 准备用于EBR-I堆Ⅳ号堆芯的钷-1%(重量)铝原型燃料棒辐照后的物理测量结果^[37]

分 类	直径间隙 厘米	长 度, 厘 米		重 量, 克		平 均 直 径, 厘 米		密 度
		初 始	最 终	变 化	最 终	变 化	最 终	
无热电偶的	0.010	21.626	21.623	-0.003	65.83	-0.51	0.510	-0.73
无热电偶的 (有铈套筒)	0.048	21.600	21.590	-0.010	67.06	+1.19	0.508	+1.86
带热电偶的	0.010	21.600	21.575	-0.025	62.88	+0.85	0.514	+0.07
带热电偶的	0.048	21.610	21.620	+0.010	61.96	+0.03	0.511	-0.86

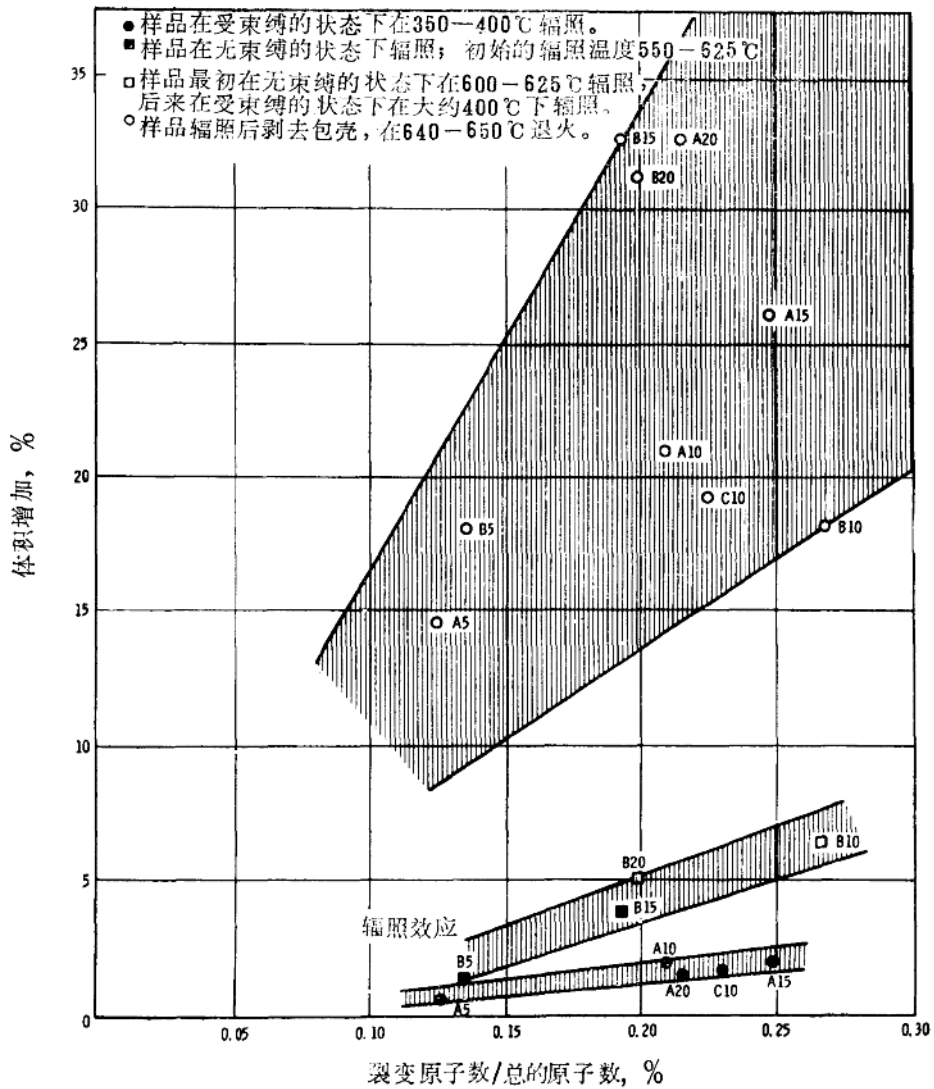


图20.4 燃烧、辐照温度和辐照后在640—650℃的热处理对铝—铜合金体积的影响^[31]

- 样品在受束缚的状态下在350—400℃辐照；
- 样品在无束缚的状态下辐照，初始的辐照温度为550—625℃；
- 样品最初在无束缚的状态下在600—625℃辐照，后来在受束缚的状态下在大约400℃下辐照；
- 样品辐照后剥去包壳，在640—650℃退火。

明, 在该 燃 耗 水平上体积没有变化。发现了芯棒和包壳之间有断续结合 (与在铝合金包壳的样品中所看到的相似), 尤其是在铝-铪与不锈钢包壳相贴紧的燃料棒里更为明显。在 450°C 以下, 铝-铪合金和不锈钢是相适应的。辐照温度高于 500°C 时, 发生共晶组织的球状化。因为任一结构的燃料棒都没有薄膜形成, 所以不需要加入 β 射线流的吸收体来防止薄膜的形成。

20-2.3 铪-铝合金燃料的辐照性能

实验性增殖反应堆-I (EBR-I) 的活性区曾装载铪合金——铪-1.25% (重量) 铝在低功率下运行, 以便得到关于功率分布、能谱指标、寄生俘获截面与裂变截面比和总的增殖比数据。在将这种合金燃料装入 EBR-I 反应堆整个活性区而进行这些实验之前, 曾经把 4 根含有铪-1% (重量) 铝燃料芯棒的原型燃料棒在预计堆内所能遇到的条件下做过辐照试验^[37]。

这 4 根铸造和机械加工的样品直径为 0.508 厘米, 长 21.6 厘米。两个样品有 0.22 厘米直径的轴向孔, 以便放置热电偶, 用以测量辐照期间燃料的中心温度。铝-2 合金包壳内的铝-铪样品, 其上部和下部设置了贫铀再生区。铀套筒使样品处于充满钠-钾的环形孔道中心。

有两个燃料棒燃料和包壳之间的直径间隙为 0.020 厘米, 另两个燃料棒为 0.096 厘米。这样可以探查不同间隙对燃料收缩的影响。另外, 在具有 0.048 厘米间隙的无热电偶的棒里燃料样品置于铀套筒之内, 以确定套筒对燃料收缩 (假如有的话) 的效应。这 4 根棒插在 EBR-I 堆 1 号堆芯的一批燃料内, 并安排在使它们的功率释放和燃料温度大致相同的位置。没有装热电偶的燃料棒在计算的芯棒最高温度为 386°C 的情况下, 辐照到估计燃耗为 0.09% (原子数) 为止, 而装有热电偶的燃料棒在测出的燃料最高温度为 348°C 的条件下, 辐照到估计燃耗为 0.11% (原子数)。

辐照后的检查结果摘要列于表 20.3 中。检查结果表明, 辐照引起的燃料棒弯曲, 在有较大环隙的棒中更为显著; 辐照后样品的物理测量给出不规则的结果; 燃料收缩或缩短的最大值 (0.12%) 都发生在直径间隙为 0.020 厘米, 中心温度为 348°C 的样品里。总的来说, 辐照后燃料样品的直径增大, 长度减少; 在样品中出现了无法解释的重量变化: 一个样品减少, 三个样品增加。辐照后检查结果的可能解释是: 钠钾渗入样品中可能存在的缺陷内; 氧化作用和铪或铀的相互作用。有两个燃料样品密度增加了, 而另两个样品密度却显著减少。密度的变化是由于尺寸和重量的改变引起的, 如表 20.3 所表示的那样。

20-2.4 铀-铪合金燃料的辐照性能

(a) 铀-铪在哈威尔的辐照 若干含铪合金在哈威尔做过辐照试验^[38]。几个用电弧熔化和铸造制备的铀-铪样品是在无束缚的条件下浸在钠中进行辐照的。在辐照期间用燃料盒里的热敏元件连续测量钠的温度。并在堆内装有浓缩铀样品以便与含铪样品的辐照性能进行比较。金属燃料的辐照特性对组织变化敏感, 因此铪的加入势必引

起机械性质的改变。

表 20.4 给出了各种合金样品辐照后检查的结果。辐照损伤的表征是：在塑性合金中裂变气体引起肿胀而在脆性材料中造成破裂。为了计算 R 值（密度减少的百分数/所有原子燃耗的百分数）采用了浸液密度测量法。两对含铀的铀样品，（每对分别含有 7.5%（重量）铀和 10%（重量）铀）与非合金化的铀样品作比较。在相应于上述含量的条件下铀是完全溶解的。发现在 500℃ 时（ α 相铀），在含有 7.5%（重量）铀的铀样品里的均匀肿胀变形小于非合金化铀。在 700℃ 时（ β 相铀），非合金化铀和含 7.5%（重量）铀的铀样品均呈现出较大的体积增加，而且含 7.5%（重量）铀的合金样品出现小裂纹。含有 10%（重量）铀的铀样品由于辐照而发生严重破裂和变形。这就使人们怀疑可能铀的析出使这些样品的不良辐照性能更加恶化。

表 20.4 含铀核燃料在燃耗期间的性能与铀燃料的比较

组 份	温度 ℃	所有原子 的燃耗	体积增加 %	R 值*	辐照后的 外观观察
非合金化铀	500	0.26	10.2†	34†	良 好
非合金化铀	700	0.27	11.5	33	良 好
铀-7.5%（重量）铀	500	0.33	9.7	17	良 好
铀-7.5%（重量）铀	700	0.32	14	28	小 裂 纹
铀-10%（重量）铀	400	0.29	18.3	53‡	变 形
铀-10%（重量）铀	700‡	0.29	25.4‡	70‡	大 裂 缝
铀-13.6%（重量）钼	500	0.50	3.5	6	很 好
	700	0.47	1.6	4	很 好
铀-13.6%（重量）钼-7.8%（重量）铀	500	0.22	11.2‡	45‡	破 裂
	700	0.22	2.7	12	良 好
铀-13.6%（重量）钼-7.8%（重量）铀	500	0.44	—	—	侧 面 肿 胀
	700	0.42	—	—	破 裂 和 变 形
铀-47.8%（重量）铀	500	0.62	9.2	13.6	良 好
铀-15.4%（重量）铀	500	0.54	14.0	22	良 好
铀-47.8%（重量）铀	800‡	0.56	20.4	30.0	良 好
铀-39.6%（重量）铀 （挤压的）	500	0.20	1.8	8.5	很 好
铀-63.6%（重量）铀	500	0.83	5.4	6	良 好

说明：除注明者外，所有含铀的样品都是电弧熔化和铸造的。

* R 值 = 密度减少的百分数/所有原子燃耗的百分数；

† 3 个样品的平均值；

‡ 据尺寸变化估计；

‡ 持续了 40 天，然后在 315℃ 下 150 天；

‡ 在燃耗 10.3% 之后出了事故，样品在 450℃ 运行。

(b) 铀-钐在阿贡国立实验室的辐照 阿贡国立实验室研究了铸造的和挤压

的铀-钐合金的辐照性能,此研究与快中子堆规划有关。用两个小的(直径0.158厘米,长0.475厘米)铀-10%(重量)钐样品和两个铀-15%(重量)钐样品进行了初步的筛选辐照试验^[39]。镀碳基镍的细棒燃料元件辐照到估计平均燃耗为总原子数的0.3%。因为使用了“针插”(Pincushion)辐照技术,要准确估计运行温度是不可能的。但是可以得出这样的结论,为用的铀-15%(重量)钐样品的尺寸是稳定的。有一个铀-10%(重量)钐样品的镍镀层在辐照期间破损了,由此可以断定,这种材料辐照性能低劣。后来,采用改进了的实验方法代替“针插”方法。

曾将若干铸造的和挤压的铀-钐样品放在充满钠-钾的燃料盒里,使之处于无束缚状态下在MTR反应堆内辐照^[40]。铸造的样品是含有3.7、6.6和13.0%(重量)钐的铀合金、而挤压的样品则是含有9.5、14.1和18.7%(重量)钐的合金。铸造的样品加工成0.305厘米直径×1.9厘米长,而挤压的样品则加工成0.318厘米直径×1.9厘米长。铸造之后,样品在500℃退火1小时。对一半的挤压样品用加热到645℃,在500℃保温1小时,然后冷却至室温的方法,以图消除择优取向。表20.5和表20.6摘要列出铸造的和挤压的样品辐照条件和某些样品辐照后检查的结果。借助中子通量监测器和计算燃料样品附近和内部的通量衰减来确定燃耗。辐照温度是根据照射开始时的条件计算的。

表20.5 铸造的铀-钐合金样品的辐照效应^[40]

样品编号	钐含量 %(重量)	燃 耗 %(原子)	辐照温度,℃*		长度变化 %	直径变化 %	重量变化 毫克
			表 面	中 心			
AA-233	0	0.097	85	95	6.7	0-6.4	-2.6
AA-229	0	0.11	90	100	0	3.2-46	-4.1
AA-230	0	0.12	95	105	0	-6.4-+26	-2.3
AA-234	3.7	0.32	160	200	6.1	3.2	3.8
AA-232	3.7	0.43	200	240	5.2	0-20	0.8
AA-231	3.7	0.66	280	340	5.6	0-33	3.1
AA-237	6.6	0.42	170	200	7.4	0-14	-242.9
AA-235	6.6	0.72	310	380	†	—	—
AA-236	6.6	0.82	340	440	19.5	66-114	-532.3
AA-240	13.0	0.32	150	190	17.5	20	3.1
AA-238	13.0	0.68	280	350	12.0	6.4-54	-15.1
AA-239	13.0	0.82	330	430	14.6	0-94	-588.9

* 温度是根据照射开始时的条件计算的; † 辐照下破损。

铸造样品经辐照后显现出有相当广泛的大晶粒材料外表面变粗糙的特性。表面变粗糙引起各向同性的尺寸变化。因为样品AA-236是在最高的计算中心温度下工作的,所以因肿胀使得这个样品的体积有很大增加。有些样品里有较大的重量亏损,这是由于样品的碎片没有完全回收的缘故。

表20.6 挤压的铀—钍合金样品的辐照效应〔40〕

样品编号	铀含量 %(重量)	制样条件*	燃耗 %(原子)	辐照温度, °C†		长度变化 %	生长率 Gi ‡	直径变化 %	重量变化 毫克
				表面	中心				
BG-1	0	纯挤压的	0.044	90	100	-3.82	-87	3.12	0.1
BG-2	0	纯挤压的	0.048	95	105	-4.89	-102	3.76	0.1
BG-4	9.5	纯挤压的	0.21	220	260	‡	—	—	—
BG-3	9.5	纯挤压的	0.43	390	490	‡	—	—	—
BG-6	9.5	热处理的	0.16	170	210	1.20	—	0-65	—
BG-5	9.5	热处理的	0.27	270	330	‡	—	—	—
BG-7	14.1	纯挤压的	0.22	220	270	65	230	-54- -11	—
BG-8	14.1	纯挤压的	0.43	390	490	96	160	-34-0	15.7
BG-10	14.1	热处理的	0.12	140	170	58	—	65-140	-8.8
BG-9	14.1	热处理的	0.42	380	480	42	—	6-97	—
BG-12	18.7	纯挤压的	0.28	270	350	6.7	23	0	—
BG-11	18.7	纯挤压的	0.37	360	460	8.4	22	0-22	—
BG-14	18.7	热处理的	0.15	160	200	13	—	0-32	-7.6
BG-13	18.7	热处理的	0.35	320	410	6.7	19	0-5.6	—

* 在450-525°C挤压。热处理由加热到625°C, 冷却至500°C并保温1小时随后冷至室温所组成;

† 温度是根据照射开始时的条件计算的;

‡ Gi=单位长度变化/裂变掉的总原子数的比例;

§ 样品不能从辐照燃料盒全部取出测量;

‡ 样品在测量前已经着火和烧坏。

非合金化铀样品在辐照期间缩短,而挤压的铀-钚样品却伸长了,这种明显的差异可能表明择优取向的类型不同。然而,挤压样品保持着以细晶粒组织为特征的良好表面光洁度,并表现出伸长率随着钚含量的增加而减少。

挤压并热处理过的样品,除了18.7%(重量)钚合金之外,在辐照后都呈现出比铸造样品更为粗糙的表面。试验结果还表明,抗辐照损伤的能力随着钚含量的增加而增高。

20-2.5 铀-钚-钼合金燃料的辐照性能

(a) 铀-钚-钼在哈威尔的辐照 因为曾有一个铀-13.6%(重量)钼燃料样品的辐照试验一直做到800℃时尺寸仍然是稳定的,因此,铀-钚-钼合金就作为可能的燃料材料而引起人们的重视^[37]。在表20.4中摘要列出4个电弧熔化和铸造的铀-钚-钼燃料样品的辐照后检查结果,这些样品的物理性质与20-2.4(a)节描述过的铀-钚样品相类似。有一个铀-13.6%(重量)钼-7.8%(重量)钚合金在500℃下辐照发生了严重破裂和出现了高R值。另一个类似的样品在700℃辐照却没有发生变形和破裂,而R值也只有12。这个辐照温度高的样品在辐照时可能是单相的体心立方晶格,所以,明显地呈现出较好的尺寸稳定性。这个特异的结果也可能是由于在较高的温度下脆性降低的缘故。

铀-13.6%(重量)钼-21.6%(重量)钚合金样品在500和700℃下辐照发生了严重的变形和破裂。这种合金在500℃时三相共存,虽然在700℃时均匀合金的组织只有单一的γ相,但由于在700℃时保持有自由态的钼,所以怀疑在这种样品里有微量钚析出。

在这些初步试验之后,辐照了一组具有较低钼含量(重量6.7到11.8%)和钚的含量为8.4至17.7%(重量)的样品^[41]。电弧熔化的样品(直径0.318厘米,长0.636厘米)在900℃下做了2天的均匀化热处理,随后用油淬火,但产生细晶粒组织的尝试并未实现。

表20.7 铀-钚-钼合金的辐照结果^[41]

组 份, % (重量)				密度, 克/厘米 ³		体积增加 %	燃 耗 裂变/厘米 ³ ×10 ²⁰	S*	功率 瓦/克
U ²³⁸	Mo	Pu	U ²³⁵	辐 照 前	辐 照 后				
73.5	6.7	8.4	11.4	17.72	11.52	53.8	4.0	51	73
73.5	6.7	8.4	11.4	17.69	9.77	81.1	7.8	55	103
76.4	6.6	16.4	0.6	17.78	10.02	77.4	4.3	70	78
76.4	6.6	16.4	0.6	17.78	9.28	91.6	7.9	59	110
67.2	11.9	8.8	12.1	17.06	13.49	26.5	4.0	25	75
67.2	11.9	8.8	12.1	17.05	11.73	45.4	7.8	29	103
70.1	11.8	17.7	0.4	16.99	15.22	11.6	4.4	10	85
70.1	11.8	17.7	0.4	17.03	10.42	63.4	8.3	41	119

$$* S = \frac{\% \Delta V}{\%(\text{原子}) \text{ 燃耗}}$$