

环手册

212科技图书馆《环手册》翻译组

1972

第18章 钷金属燃料

曾推荐许多种含钷金属材料作为核燃料应用（参看第20章），但是其中只有几种已试验成功，并进行了大批生产。已取得了用铝—钷、钷—铝及钷—铁合金作燃料的反应堆的运行经验，本章就只介绍这几种燃料的制造方法。

18—1 铝—钷合金

含钷达20%（重量）（2.7%（原子））的铝—钷合金是大规模用于热中子反应堆的第一种含钷材料。曾把该合金作为阿尔科，爱达荷（1958）材料试验反应堆（MTR）的钷装料；同时用作汉福特（1960）钷燃料循环研究用反应堆（PRTR）的增添浓缩燃料以及超钷燃料元件（1959）等。为了这种或那种目的曾铸造了约6吨的铝—钷合金，挤压了直径大于0.005吋的铝—钷合金棒材，轧制了2000件以上的包壳板材，用钷总量达几百公斤。用这种原料的反应堆的性能是极其满意的。

18—1.1 熔化和铸造^(1,2)

铝—钷合金通常在石墨或铅土坩埚中于800—950℃在空气中熔化，并在725—800℃浇铸到石墨模中。铸件的收缩率约为2%。制备合金的方法是向熔融铝中添加金属钷或添加氧化钷及冰晶石，以配制所要求成份的钷—铝合金。在熔融铝中添加金属钷进行合金化时，如不用感应搅拌，就会生成中间化合物 PuAl_2 ，并沉积在坩埚底部。Bloomster^[1]发现，在感应搅拌条件下，在950℃10分钟可使1400克钷全部熔解到10公斤的铝中。如采用电阻加热方法，就必须用石墨棒机械搅拌熔体，使生成的中间化合物重新溶解。搅拌时能够感觉到在坩埚底部有化合物晶体，犹如“沙子”一样，经过半小时或更长时间才能使这些晶体溶解。

直接向铝中添加 PuO_2 及冰晶石进行合金化是经济而有效的一种方法。Bloomster^[1]应用了Runnals及Wanchope^[3]的方法，在有冰晶石存在的情况下，向熔融铝中添加 PuO_2 ，配制了名义重量为20磅的合金。所用冰晶石重量为铝重的8—29%。在1050℃经1小时还原完全后，将溶剂从熔融金属中除去，待温度降到725—800℃时，就进行浇铸。用这种方法熔化合合金时钷的回收率为99.6—99.9%。

同其它方法比较，用急冷铸造方法更好一些，不过合金内容易产生负偏析，但在同一炉号中，点与点之间的钷含量变化，或不同炉号之间钷含量的变化，可以保持在名义钷含量的±4%以内。

Koler^[4]改进了用直接注射法浇铸由锆合金包壳的铝-钷合金燃料元件的技术。他利用的锆合金管(长为90吋,直径为1/2吋)约1/3秒就能被熔融铝-钷合金充满。这种合金的密度可达到理论密度的95%,芯体同包壳结合良好而均匀,结合强度为3000-4500磅/吋²,但是要使点与点之间的钷含量保持在名义成份的±5%之内还有困难。

铸造渣皮及金属切屑在冰晶石作用下可以重熔和回收,而不需要再进行化学处理。

18-1.2 挤压

铝-钷合金容易被挤压成任何所需要的尺寸和形状,并且具有极好的表面光洁度。Ross^[5]扼要地总结了对各种成份和形状的铝-钷合金的挤压结果:

“1. 在500-550℃范围内对毛坯进行挤压能够获得极好的挤压表面,对含14%(重量)和20%(重量)钷或铀的合金来说尤其是这样,但在较低温度下挤压,则容易擦伤这些合金的表面。

“2. 采用最大导口半径为0.010吋的剪型及流线型挤压模,能获得比采用具有较大半径的挤压模时为好的挤压表面。

“3. 在5-20吋/分限度内的挤压速度或冲头速度不是临界值。

“4. 挤压毛坯时不需要使用润滑剂*,如果任意在挤压筒和模具上使用润滑剂,就会使挤压件表面产生不易除去的黑斑,好象有轻微擦伤似的。当然,为了使挤压件尾端容易脱出,可以在垫块及挤压模上使用少量的润滑剂。在燃料管共挤压时,在心轴上使用大量润滑剂也是必要的。

“5. 通过适当的芯坯设计,能够减少共挤压时的芯体变粗,但是,尚未制定出通用的设计准则,而个体的毛坯设计则是通过试验及误差校正来确定的。”

表18.1给出了在几种情况下的挤压常数。由于铝-铀合金与铝-钷合金具有相似的性能,因此,铝-铀合金实际上可以作为研究铝-钷合金加工工艺时的代用材料。

表18.1 铝-钷合金的挤压常数

合 金	毛坯尺寸,吋	温度,℃	面积缩减	冲头速度 吋/分	挤压常数 K* 吨/吋 ²
Al-1.8%(重量)Pu	φ 2.5 × 11	52	27:1	20	12.3
Al-7.35%(重量)Pu 与Al-1%(重量)Nb 包壳管共挤压	φ 2.5 × 12	525	6.7:1	20	16.9
Al-15.75%(重量)Pu	φ 0.375 × $\frac{1}{4}$	450-500	87:1	—	16.8-24.6

$$* K = \frac{P}{\ln R}$$

P=挤压压力, 吨/吋²

R=初始截面与最终截面之比

* 润滑剂系指在油中的胶态石墨

18—1.3 軋制

铝—钷合金在室温及较高温度下轧制都可得到较高的压缩率。通常在500—600℃进行铸锭的初轧，而铝—钷合金与铝包壳的结合轧制也在这样的温度范围内进行。合适的轧制压缩率是每道30%。

18—1.4 去污

虽然铝—钷合金中含有相当数量的钷，但如果用适当方法把表面上的疏松颗粒去除干净，就可以在较长时间内不再受污染。合金的去污过程是：先用10% HNO_3 —2% HF 溶液浸蚀3分钟，然后用水冲洗，再放到这种去污溶液中用超声波清洗5分钟，最后在水中用超声波再洗涤10分钟〔6〕。去污时，如果利用干净的溶液，并注意防止表面再沾污，则铝—钷合金部件能够在4—24小时内保持不受污染〔6〕。

18—1.5 抗腐蝕性

在水冷反应堆中，一旦包壳管破裂，铝—钷合金就暴露在350℃的水中，而受到快速腐蚀。曾制备了某些经过改良的合金，它们具有大大降低了的腐蚀速度〔7、8〕。Al—2%(重量)Pu—11%(重量)Si及Al—1.8%(重量)Pu—2%(重量)Ni合金具有均匀的腐蚀速度。在350℃的静态水中，其腐蚀速度约为0.002吋/月。但这些合金的腐蚀速度对结构相当敏感，因此，为了获得良好的抗腐蚀性，要求第二相细小而均匀地弥散在基体内，而为了得到所要求的结构，上述含镍合金就应在700—740℃浇铸到冷模中。

18—1.6 国家研究实验堆(NRX)元件的制造〔3、9〕

从1952年起，钷燃料元件就在加拿大乔克河国家研究实验反应堆中进行了辐照。反应堆的含钷燃料是非结合型的，由铝做包壳，芯体为铝—钷合金。元件由12根Al—3.7%(重量)Pu合金组装在壁厚为0.008吋的精制铝包壳管中，每根长度为 9.022 ± 0.005 吋，直径为 1.360 ± 0.002 吋。整个元件的总长度为10呎。

芯体铝—钷合金的制备过程是：先用冰晶石还原 PuO_2 ，制备出含钷27.8克、重量为780克的毛坯，然后将这种毛坯在大气中于石墨坩埚内感应加热至850℃重熔，并将金属浇铸到外径为4吋，内径为1.43吋，深为14吋的石墨模中。为了使气体在浇铸过程中能够逸出，铸模应与垂直方向倾斜30°。铸锭直径为1.41吋，长度为12吋。长度方向上产生了一个2.5吋长的缩管。从锭子顶部到底部的钷含量变化约5%，而在铸锭表面产生了负偏析。熔化过程中氧化损失约2%。铸锭精加工到尺寸时的重量为 595.0 ± 10 克，其中含钷约21.7克。加工好的每根合金棒，都要用射线照相方法检查其内部缺陷。

已加工好的Al—Pu合金棒在通风橱内装入经过检验的套管中。管的开口端经过去

污处理后,用橡皮塞密封,然后通过安在橡皮塞上的管抽真空,同时将管加热到 160°C ,保温4小时。待冷却后去掉橡皮塞,换上毡垫,用拉拔方法使套管与芯体元件接触,即在芯体竖管上加压力,迫使套管与芯体通过拉模,以消除芯体与套管之间的间隙。将套管切割到合适的长度,嵌入铝制端盖,然后将套管端卷贴在端盖上,将端盖旋紧并进行焊接。制成的元件用氦气检漏并在酒精中进行气泡检查。

18-1.7 材料試驗反应堆(MTR)燃料元件的制造

材料试验反应堆(MTR)燃料元件由18或19块长度约24吋,宽28吋,厚0.060吋的轧制包壳板组装而成,每块燃料板由一个厚度为0.020吋的燃料芯体,包覆0.020吋的铝所组成,板与板之间有冷却间隙。板都弯曲成一定的弧度,以便有较大的刚性。包括端部金属附件在内,装配好的燃料元件总长度为4呎^[10](图18.1)。

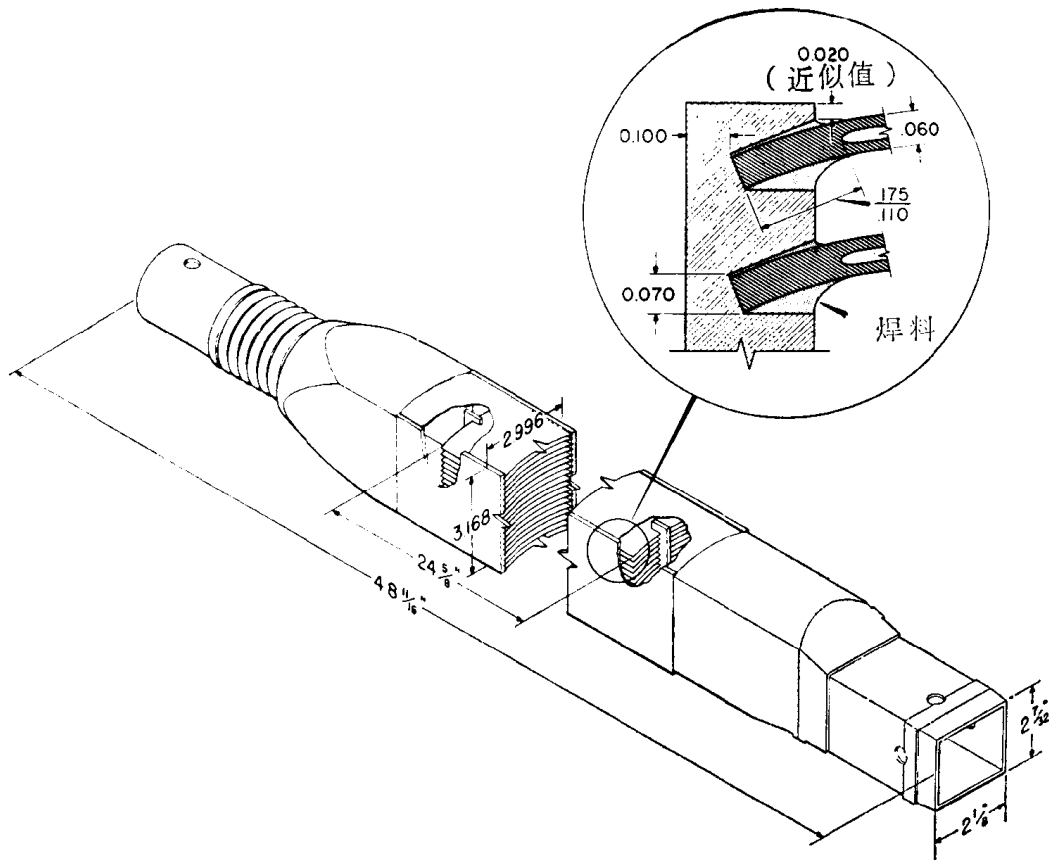


图18.1 材料试验反应堆(MTR)的燃料元件^[15]

材料试验反应堆燃料元件最初是由洛斯-阿拉莫斯及橡树岭联合制造的。生产出来的一些元件曾在材料试验反应堆中进行过辐照。元件是用橡树岭发展的制造铀燃料元件的方法^[10]制备的。后来在汉福特制造了全套的元件堆装料,并在1958年装进材料试验反应堆中^[12]。由于他们使用的设备及装置不尽相同,因此,制造这些元件的方法在细节上也有所不同。Tate^[11]报导了在洛斯-阿拉莫斯应用的制造工艺,摘要如下:

(a) **熔化和铸造** 将650克经过清洗的炉料,即1/4吋的高纯铝棒及新加工的钷金属,配成铝-10%(重量)钷合金成份,在氧化镁坩埚中进行真空熔化,并在940℃保温1小时后,用底注方法浇入水冷铜模。出炉后将铸锭切断,进行重熔,即再在940℃保温一小时,使合金均匀化,然后快冷浇铸成 $3/4 \times 2 - 1/2 \times 6$ 吋的毛坯。曾发现在所用设备条件下采用浇铸温度为685℃、浇孔为3/32吋的工艺最为适宜。如果毛坯经过切除端余和机械清理后表面良好,化学分析结果也满意,则还要用射线照相方法检查每个毛坯中 PuAl_4 的偏析,要求钷含量保持在9.5-10.5%(重量)范围内。

(b) **轧制** 铸锭在大气中于550℃进行热轧,轧辊应预热到250℃。锭子大约经6道轧制(每道压缩0.050吋),由0.75吋热轧到0.45吋,即压缩40%。然后以每道0.005-0.010吋的压缩量,再将它冷轧到0.370吋,这样总的压缩率约为50%。轧制后锭子进行射线照相,并切割成 2.10×2.19 吋的芯体,然后用排液法测定每个芯体的密度,并根据密度值用下式验算钷的含量^[18]:

$$X = 1.24924 - 3.37296(1/\rho)$$

式中: X = 钷的重量分数,

ρ = 芯体密度。

(c) **芯体装配** 芯体先在 HNO_3 -HF液槽中清洗,再在沸水中漂洗,并在空气中吹干,然后将芯体材料与经过同样方法清洗的铝部件进行装配。装配时,将芯体压入型框中,放在带有抽空管的外框内,并紧固在两个盖板之间。装配操作在通风橱中进行。装好的组件经测量 α 沾污后,用气体吹管将它预热到300℃,并用惰性气体电弧焊和纯铝填料棒把各边封焊起来。焊好的组件进行第一次氦气检漏,要求漏气率小于1%,而经过补焊后就应不再漏气了。将焊好的毛坯组件上的抽空管与真空歧管连接起来,进行一夜的除气,在歧管真空度达到 0.5×10^{-3} 毫米汞柱后,将组件加热到540℃,保温4小时,然后将抽空管夹紧,以便进行组件的焊接。焊接前先用气体吹管把抽空管预热到300℃,然后再进行压力焊接。并将超过封口的管端打平,以便最后焊死。将已抽真空和封焊的组件装运到橡树岭,轧制成燃料板,并采用与铀元件大体相同的方式装配成燃料元件。

在汉福特,全部芯体装料的制造都模仿了在洛斯-阿拉莫斯及橡树岭所用的方法,但在一些重要方面有所不同,下面将作详细介绍。它的工艺流程图表示在图18.2中。

(d) **熔化和铸造** 熔化、合金化和铸造都是在大气中而不是在真空中进行的,因为在大气中操作产率高,设备简单,而且这种工艺经过在乔克河^[9]和汉福特改进之后已有成熟的经验。将1500克核纯铝熔化并升温至900℃后,把210克直径1/4吋的钷棒添加到熔融铝中,以配制Al-14%(重量)Pu的合金。在900℃保温1小时后,将熔体温度降低到700℃并浇铸成三根直径为1.25吋、长度为8吋的棒。切去铸棒端余,并在每端取样以分析钷含量,余料则进行重熔回收。在得到每根棒的钷分析结果后,铸棒就可以切割成圆柱体模锻毛坯。每根毛坯名义含钷量为18.16克,重量为55克。

(e) **模锻** 因为适用于带手套箱的轧机尚未使用,故利用模锻方法将铸造合金模锻成芯体部件,虽然存在着粘模问题,但这个方法还是比较好的。模锻时,芯体前端及后端都曾发生畸变,因此必须控制芯体的增厚。铸坯在400℃的热模中,以125吨压

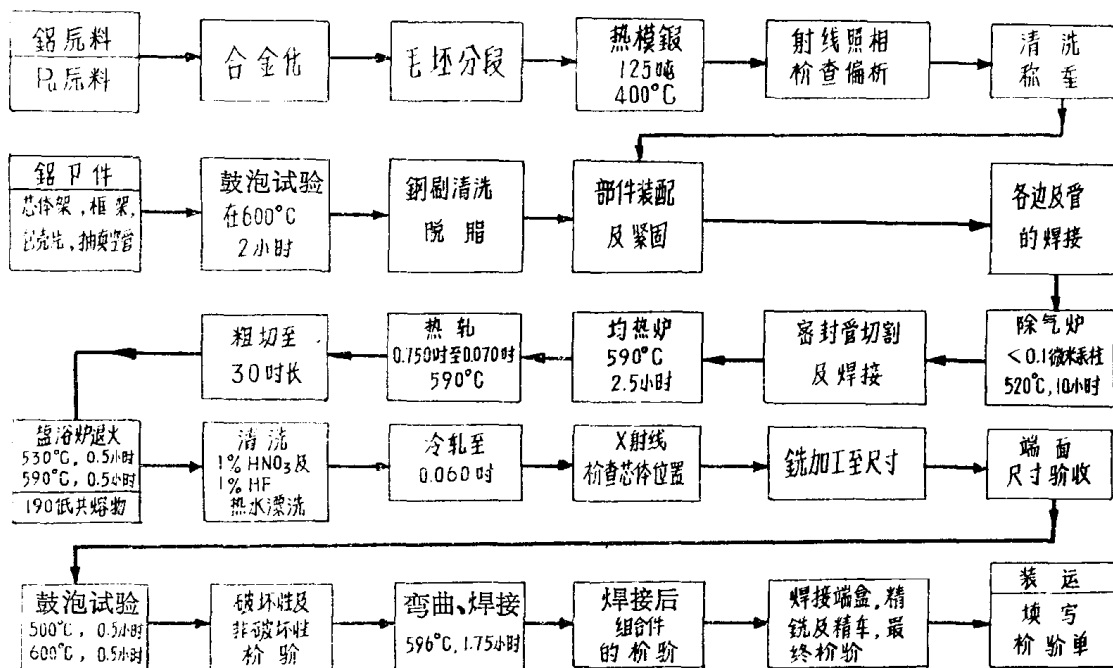


图18.2 材料试验反应堆(MTR)燃料元件制造工艺流程图

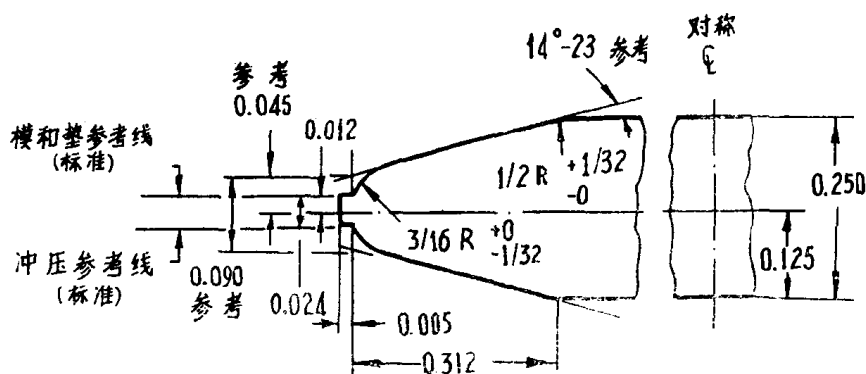


图18.3 材料试验反应堆(MTR)的锻坯形状

力可模锻成如图18.3所示的形状, 锻好的坯料要用射线照相方法检查偏析及裂纹, 合格坯料按下述方法进行清洗:

- ① 钢丝刷清理;
- ② 在10% HNO₃ - 2% HF 溶液中浸蚀 3 分钟;
- ③ 静水漂洗;
- ④ 在清洗液用超声波清洗 5 分钟;
- ⑤ 在水槽中用超声波洗涤 10 分钟;
- ⑥ 用三氯乙烯去水;
- ⑦ 检查 α 沾污。

对无 α 沾污的坯料称重后, 放入预先清洗干净的铝芯框内, 然后与型框装配在一起, 并紧固在两个盖板之间。用自耗电极自动焊接机, 在 25% 氮-75% 氩保护气氛

下，将组件的三个面焊好，而装有抽空管的一面则用手工焊接。焊好之组件要进行氦气检漏，然后把 24 个已焊好的组件放在同一炉子里的架子上，并将组件上的抽空管与真空歧管连结起来。当真空度达到 1×10^{-4} 毫米汞柱后，将炉子加热到 520°C ，保温 10 小时，然后在抽空管的三个位置上，用冷焊使之密封。在随后的轧制过程中，曾发现有一些组件起泡，这是由于炉内温度分布不均匀和除气温度过低所引起的。

(f) **热轧** 将组件加热到 590°C ，至少保温 2.5 小时后，在一台轧辊为 6×8 吋的轧机上轧制，经 6—7 道轧制（每道压缩率为 30%，道次之间要重新加热轧板）后，组件厚度由 0.75 吋轧到 0.070 吋，长度由 5 吋轧到 5 呎。在进行下一道工序之前，要将轧后组件的端部余料加以切除。

(g) **熔盐退火** 轧制后的组件，用熔盐退火处理，可以减少燃料板在以后加工过程中起泡。熔盐退火处理时先用酒精稀释的专门熔盐* 涂抹每块轧板，然后将这些板放在浅盘中，装入密闭的蒸馏罐内，将它抽空并加热到 150°C ，然后通氦气到这个蒸馏罐中，使压力达到 1.0 磅/吋²，并保持氦气流量为 5 呎³/分。当燃料板加热到 500°C 后，抽空蒸馏罐，并用氦气进行冲洗，最后用氦气重新充满蒸馏罐。之后将燃料板加热到 530°C 以上，均热 30 分钟。从蒸馏罐中取出燃料板，并在熔盐凝固前将它们分开。燃料板在热水中洗涤后，再在 10% HNO_3 —1% HF 溶液中进行擦洗并检查气泡。熔盐处理的优点在于能从铝中排除氢气，如果不经这样的处理，燃料板就会在随后的鼓泡试验或焊接操作时起泡。

(h) **冷轧** 把经过鼓泡检验的熔盐退火后的燃料板冷轧到 0.060 ± 0.003 吋的最终厚度。最终燃料芯体的尺寸为：最大长度 24 吋；最小平均长度 23 吋；最小宽度 2.45 吋。芯体长度可以用控制最终厚度在规定的公差范围内的方法来调正。

(i) **定位及铣加工** 对燃料板进行射线照相，就可以确定芯体的精确位置。射线照相时可将底片紧贴在燃料板上，并使它与芯体位置相吻合。在芯体区域以外，穿过燃料板和底片钻若干个定位孔，通过定位孔，用导销把 20 块板固定在一起，然后将这些组件放置于手套箱内的铣床上铣加工到最后宽度，当铣加工板的长度时，可用辅助夹具和活动导销将这些板重新加以固定和夹紧。

(j) **X 射线吸收扫描** 可用记录式 X 射线透射光度计上的一个 0.250×0.05 吋的窗口，在纵轴上以 5—10 吋/分的速度对铣加工后的燃料板进行扫描，以检验其整个长度上的钷含量变化。采用这种设备和上述操作条件，可以测出钷含量的微小变化，在任一 0.01 吋² 面积内，燃料的密度变化应在平均燃料密度的 5% 以内。由于芯体厚度的变化（0.001 吋）已超过了芯体厚度规定的尺寸公差（0.02 吋）范围，因此才发展并使用 X 射线吸收检验技术。用这种方法，能检查出相当于芯体厚度 ± 0.00025 吋的钷含量变化，所以用这种方法对控制芯体端部增厚是很有价值的。如果不用这种方法加以控制，则芯体端部的厚度可能比规定值大 40% 以上。图 22.4 是使用这种方法得到的结果。

(k) **鼓泡试验** 将所有要检验的燃料板都加热到 500°C ，保温 30 分，再加热到 600°C ，保温 30 分，然后检查板的起泡和 α 沾污。如果不严格控制加热的上限温度及

* 指熔点为 190°C 的低共熔物

加热时间, 就可以测出在加热时钚通过包壳的扩散。当温度加热到接近 600°C , 总时间接近 8 小时, 在 4 吋^2 探头的面积上受到了强度达 20000 个计数/分或更大的 α 放射性, 如图 18.4 所示。最初的放射性强度并未造成污染, 但随着时间的延长, 发生了泄漏, 从而造成了元件包壳的污染。

(1) **装配及焊接** 将燃料板在模中弯曲, 然后装配到垫有铝—硅合金焊条的铝制侧板 (也可用铝—硅包壳的铝侧板) 的槽口内。对组件进行脱脂、酸浸及冲洗。所有的连接处都涂上助熔剂*, 然后用不锈钢夹具装配各部件, 使其位置适当。组件装配以后就转送到陶瓷间, 装进蒸馏罐中, 抽空蒸馏罐后, 就充入氩气, 并放进加热到 596°C 的炉子中, 待组件达到该温度后, 焊接就完成了。从炉中取出蒸馏罐, 待冷却后, 就从蒸馏罐中取出组件, 进行冲洗, 并浸到 $\text{HNO}_3\text{—HF}$ 溶液中去掉残留的助熔剂。

(m) **检验及最后组装** 要对焊好的燃料元件的板间隙、总宽、总高、曲面高度及凹凸高度进行检查, 然后将铸铝端盒就位焊接, 并对整个组件的端面进行加工, 以便使燃料组件的尺寸与它在反应堆中的位置能精确配合。

(n) **补偿棒** 补偿棒燃料与正规的燃料元件不同, 因为补偿棒燃料的顶部及底部盖板都是由机加工过的厚铝板做成的。补偿棒部件先进行局部装配、焊接、加工和检验, 然后再焊接到燃料区中。补偿棒的测量长度为 14 呎, 铣加工后的平直度在 ± 0.007 吋范围内。

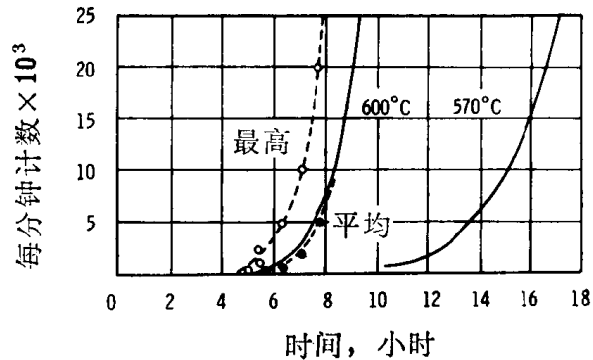


图 18.4 钚与铝的扩散。包壳厚度为 0.02 吋计算得到的表面剂量率

18—1.8 生产超钚元素燃料元件的制造

生产超钚元素燃料元件直径为 0.94 吋, 长 60 吋, 以 $\text{Al—7.35\% (重量)Pu}$ 合金为芯体, 每根含钚量为 83.3 ± 4.2 克, 包壳材料是 0.040—0.120 吋厚的 X-8001 型铝合金^[14]。

X-8001—F 型合金的成份 (%) 为:

Ni	0.9—1.3;	Fe	0.45—0.70;
Si	0.1(最大);	Cu	0.15(最大);
Li	0.008(最大);	Cd	0.003(最大);
Co	0.001(最大);	B	0.001(最大);
其他元素每种为 0.05(最大);			
其他元素总含量为 0.15(最大);			
其余为铝。			

* 33 号 Alcoa 焊剂

每根棒都有塞子和端座配件。芯体的制造工序包括：①铸造成具有一定直径和尾端外形的坯件；②机加工成具有一定长度及前端外形的毛坯；③与包壳部件组配成共挤压毛坯；④除气；⑤将组装毛坯共挤压到最终直径，成为结合型元件。最初制造这些元件时曾特别小心，因为共挤压是在沾污的压机上进行的，尽管包壳燃料棒在随后的工序中容易去污。制造这种元件的工艺流程图表示在图18.5中。

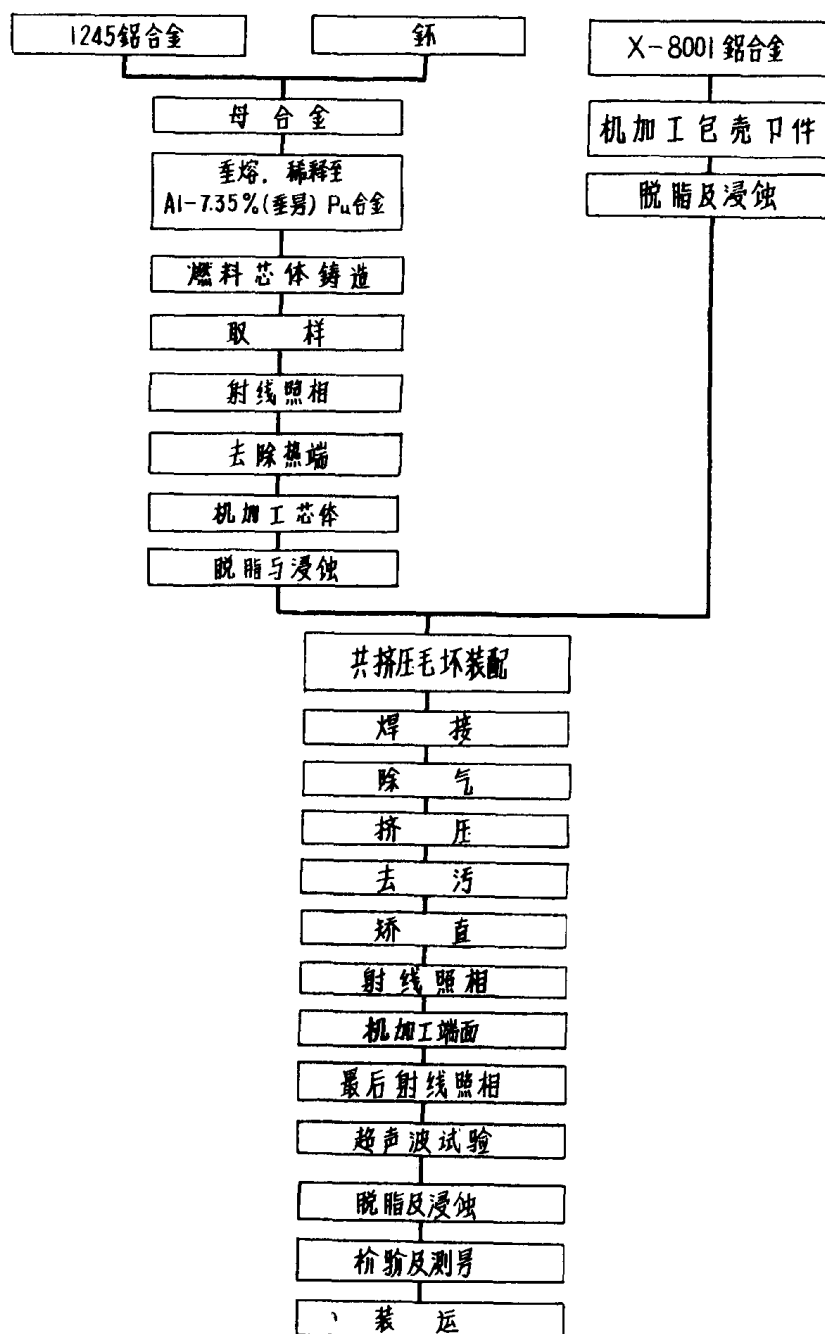


图18.5 生产超铪元素燃料元件制造流程〔14〕

芯体合金是在敞开的感应炉中于石墨坩埚内熔化制备的。制备合金时将钷金属或铝-钷母合金加入到温度为 $850-950^{\circ}\text{C}$ 的熔融铝中，以配制成所要求的合金成份。曾发现，铅土坩埚上的釉层使合金增硼达 100ppm 。感应搅拌或手动搅拌熔体 $10-20$ 分钟就使钷金属或铝-钷母合金全部溶解。在 775°C 将熔体浇铸到预热至 300°C 的厚底薄壁的石墨模中，在模子上装有一个喇叭型冒口，以便给铸件补缩。要使金属很快充满模具，以获得良好的表面质量。最初，浇铸的芯坯直径要求控制在名义尺寸的 0.003 吋之内，所以一个模子浇铸 30 个毛坯后就不能再用了。后来把公差放宽到 0.01 吋，一个模子就可以浇铸 150 个毛坯。毛坯底端铸成凸形。铸件脱模后，将冒口锯断，然后用样板刀将上端加工成凹形。精加工后毛坯的重量为 $1100-1150$ 克，钷含量则在名义值的 $\pm 5\%$ 之内。每炉浇铸 $8-14$ 个毛坯，每个毛坯的辐射强度为 160 毫伦琴/小时(直接接触 2 吋探头测得)。毛坯设计及共挤压棒的外形^[14]表示在图18.6中，包壳部件用三氯乙烯脱脂，在 NaOH 中浸蚀，然后再在 HNO_3-HF 溶液中浸蚀。表18.2列出了这些清洗和浸蚀条件。

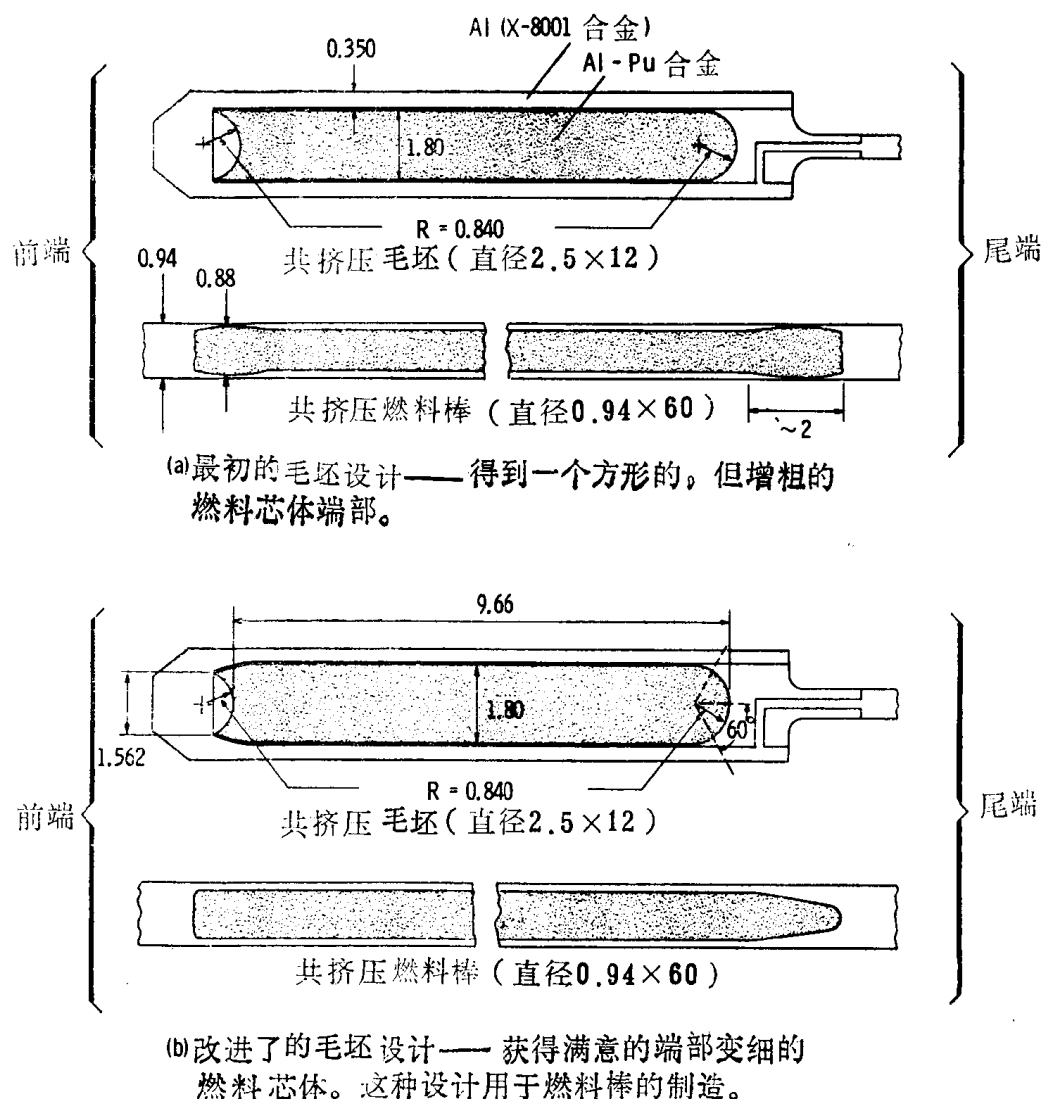


图18.6 共挤压毛坯和燃料棒^[14]

表18.2 生产超铀元素元件的浸蚀操作^[14]

A. 包壳及芯体的共挤压毛坯的清洗 1. 脱脂: 三氯乙烯 包壳: 蒸汽 芯体: 液体(20℃) 2. 浸蚀: NaOH 浓度: 10%(重量) 温度: 20℃ 时间: 5分钟 3. 洗涤: 流水(20℃) 4. 浸蚀: HNO₃-HF 浓度: 10%(体积)HNO₃ 1%(体积)HF 温度: 20℃ 时间: 30秒 5. 洗涤: 流水(50-60℃) 6. 干燥: 热风 B. 挤压棒去污 1. 浸蚀: NaOH 浓度: 10%(重量) 温度: 40℃ 时间: 5分钟 2. 洗涤: 流水(50-60℃) 3. 浸蚀: HNO₃-HF 浓度: 10%(体积)HNO₃	1%(体积)HF 温度: 20℃ 时间: 20秒 4. 洗涤: 流水(50-60℃) 5. 干燥: 热风 6. 监测: 测量α沾污 C. 燃料棒最终清洗 1. 脱脂: 三氯乙烯(液体, 20℃) 2. 浸蚀: NaOH 浓度: 10%(重量) 温度: 20℃ 时间: 4分钟 3. 洗涤: 流水(20℃) 4. 浸蚀: HNO₃-H₂CrO₄-HF 浓度: 10%(体积)HNO₃ 10%(体积)H₂CrO₄ 2%(体积)HF 温度: 20℃ 时间: 30秒(正常) 15分(最长) 5. 洗涤: 流水(20℃) 6. 干燥: 擦干 7. 监测: 测量α沾污
--	---

经过清洗的部件组装成共挤压毛坯, 并将端盖焊上, 然后将一根12吋长的抽气管焊接到端盖上。共挤压毛坯在 590℃ 和抽气管路真空度 $4 \times 10^{-5} \sim 7 \times 10^{-5}$ 毫米汞柱下, 至少除气12小时。而后用经过改良的螺栓机使抽气管密封。

经过除气的毛坯送进温度为 545℃ 的加热炉中, 待毛坯温度均衡后, 运至操作温度为 525℃ 的挤压机上进行挤压, 挤压时冲头速度为 20 吋/分, 平均挤压压力为 64200 磅/吋²。用胶态石墨油作为模具及预热毛坯的润滑剂, 模具导口是流线型的, 具有 90° 的进入角。挤压棒的长度约 70 吋 (其中燃料芯体长度为 55-57 吋), 外径为 0.94 吋, 包壳厚度约 0.10 吋。断面压缩率: 芯体为 59:1, 包壳为 11:1, 总压缩率为 6.7:1。

由于受到毛坯加热时间及炉子容量的限制, 每班 (8 小时) 只能生产 12 根挤压棒。

每根挤压棒的辐射强度约为 26 毫伦琴/小时 (用 2 吋探头直接接触测量)。

由于生产超铀元素燃料元件的挤压也是在挤压裸体的铝-铀合金棒的已被沾污的挤压机上进行的, 所以挤压后在转运到没有配备通风橱的干净设备之前, 应进行表面去污。

去污时,先在10%NaOH溶液中浸蚀5分钟,接着在 HNO_3 -HF溶液中浸蚀(见表18.2)就足以把挤压棒上的大部份钚沾污清洗干净,使 α 放射性强度降到小于500衰变/分。

棒去污后,就进行矫直,在通过矫直机二次至三次以后,棒的不平度最大只有0.010吋/呎,但其长度却增加了0.05吋,而且一端相对于另一端旋转了 10° 。在挤压模出口处安装一个导管,可以大大地改善挤压棒的平直度。

有时,挤压棒通过矫直导管后,在其表面上增加了锡合金的夹杂物,但这些夹杂物可用 HNO_3 - H_2CrO_4 -HF溶液浸蚀除去(见表18.2)。

对挤压棒进行射线照相,可以测定其包壳厚度及芯体端部的位置和形状,并检查其中的夹杂或孔洞。检查后将棒切割到规定的长度,并在通风橱中加工其端接头,加工时,没有发现因挤压缺陷及其它原因而引起的沾污问题。

棒的最终检验包括:在棒的总长度上进行两次射线照相,以测定其包壳厚度;用超声波扫描方法检查未结合的面积及其它缺陷,宏观检查其表面缺陷及测量其尺寸。每根棒最大允许的未结合孤立面积为 $1/8$ 吋²,最大允许的未结合总面积为 $3/8$ 吋²,表面缺陷的深度限定为0.010吋。尺寸规定为:直径0.933-0.943吋;长度59.875-60.125吋;最大不平度0.010吋。

18-1.9 钚燃料循环研究用反应堆(PRTR)加浓细棒燃料元件的制造

钚燃料循环研究用反应堆(PRTR)加浓细棒燃料元件由19根锆合金包壳的非结合型铝-钚合金燃料棒组成,如图18.7及18.8所示。表18.3列出了这些燃料元件的有关数据。

加浓细棒元件具有某些独特的特点。由于在反应堆中非结合型燃料芯体的冷却取决于芯体与包壳之间热膨胀的差别,因此,要设法保持运行中它们之间的良好接触,以改善其热传递。因为锆-2合金的热膨胀系数($6.5 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$)与铝-钚合金的热膨胀系数($28 \times 10^{-6}/^\circ\text{C}$)差别很大,所以,芯体与包壳之间的直径间隙至少要控制在0.004吋以上,如果间隙小于0.004吋,它们之间将发生点接触,冷却时就会使

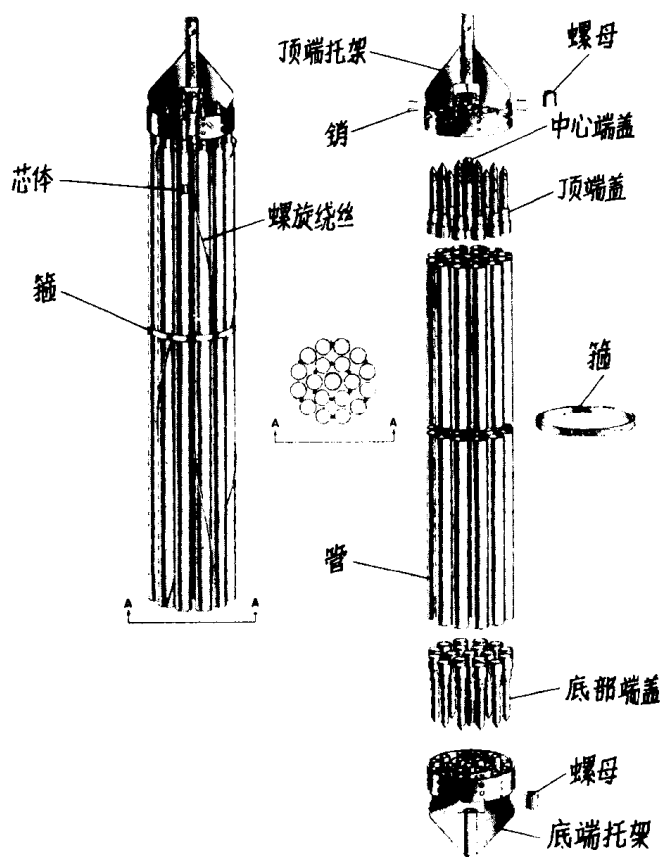
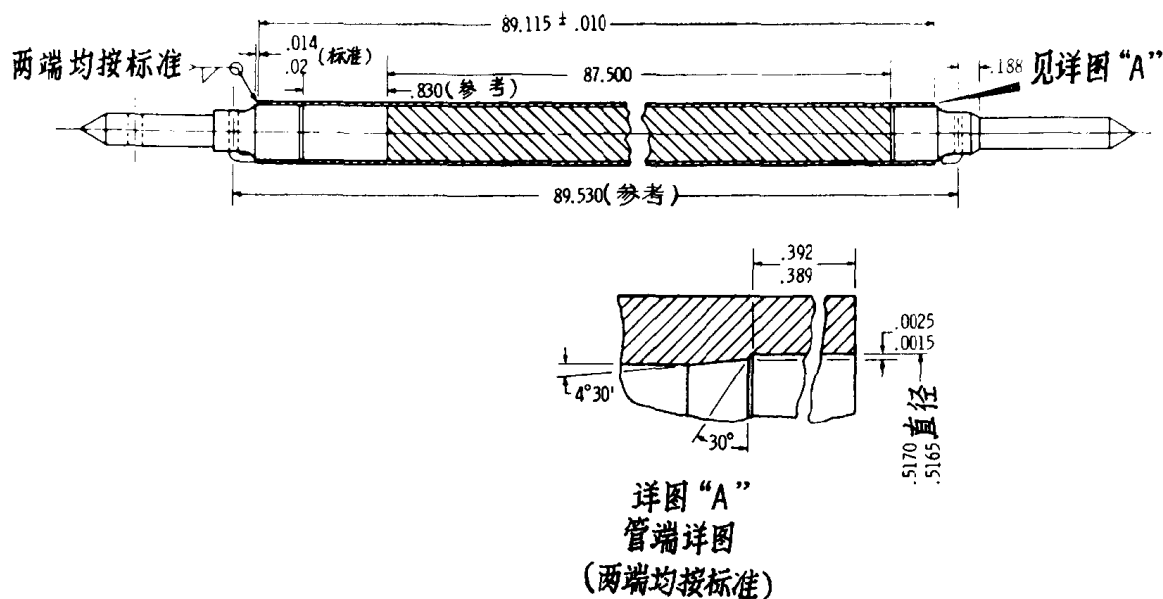


图18.7 由十九根燃料棒组成的燃料元件^[15]

图18.8 装配好的燃料元件^[15]

包壳受到压缩，而芯体则受到拉伸，致使分隔棒的绕丝松散（热压处理时不会产生这样的影响，因为热压处理时，加热较为均匀，结果包壳受拉伸，芯体受压缩，所以在螺旋绕丝箍紧的情况下，致使包壳燃料棒变形）。所以直径间隙 0.010 吋对运行较为适合。

非结合型燃料元件的制造具有某些优点：包壳和芯体可在组装前进行检验，这就可以保证在制造的最后阶段获得较高的成品率，从而降低了成本；非结合型燃料元件可以用比较简单的方法直接制造。

钚燃料循环研究用反应堆 (PRTR) 加浓细棒元件的制造工艺流程图示于图18.9中。下面将详述这种元件的制造过程。

(a) **铸造** 先感应熔化 12.7 公斤铝，然后按需要加入金属钚、金属镍及硅。根据所需成份加入的 228 克重的金属钚，在 950℃ 下 10 分钟就可以全部溶解于熔融铝中。合金在 725℃ 浇铸到石墨模中，每炉可生产 6 根直径为 $2\frac{1}{2}$ 吋，长度为 11 吋的铸坯。

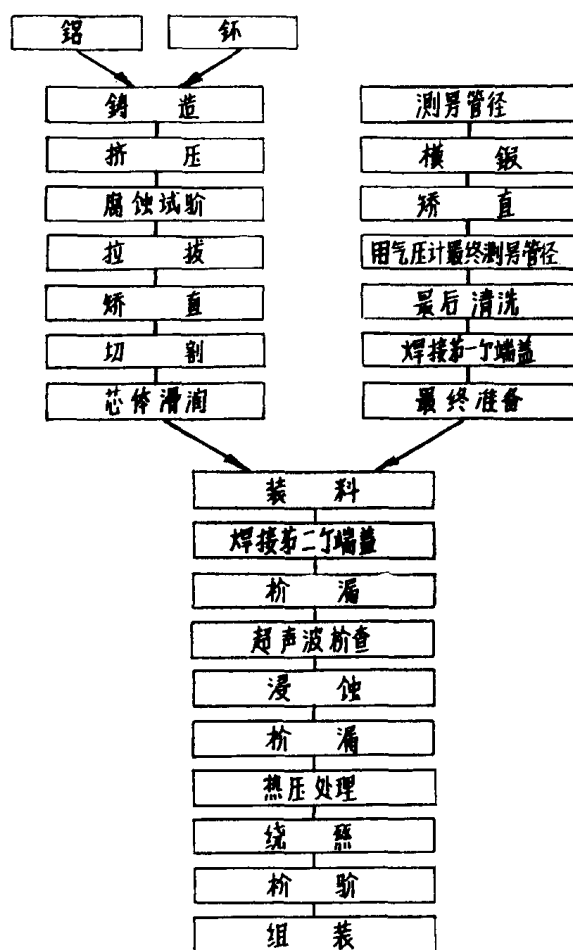
图18.9 燃料元件的制造流程图^[15]

表18.3 铝-铀燃料元件的有关数据〔15、16〕

芯体成份 *	Pu 1.81%(重量) Al 95.40 Ni 1.35 Si 1.10 Fe 0.33
铀含量允许公差	
标准偏差	0.04%(重量)Pu
芯体密度	2.77克/厘米 ³
芯体平均重量(每根棒)	780克
每根芯体棒平均铀含量	14.16克
每个元件芯体平均重量(19根棒组装的)	14820克
每个元件的平均铀重量(19根棒组装的)	269.04克
芯体直径	0.500±0.0002吋
芯体长度	87.500±0.020吋
包壳材料	锆-2合金
包壳内径	0.505±0.001吋
包壳外径(名义尺寸)	0.565吋
包壳厚度(名义尺寸)	0.030吋
包壳长度	89.115±0.010吋
棒长度(总长)	
正规棒	92.56吋
中心棒	93.11吋
元件长度(总长)	97 $\frac{5}{8}$ 吋
棒重(近似值)	3磅
由19根棒组装的燃料元件重(近似值)	59磅
绕丝材料	锆-2合金
绕丝直径	0.072吋
每个元件箍条数目	4

* 芯体成份后来改为: Al-1.8%(重量)Pu-2.0%(重量)Ni

(b) **挤压** 将铸坯加热到525℃并保温2小时后, 送进热挤压筒中, 并以200吨的压力和20吋/分的冲头速度通过平面剪模进行挤压, 铸坯被挤压成直径为0.503吋, 长为200吋的棒体。

(c) **腐蚀试验** 从每根挤压棒上切取2吋长的试样, 在350℃的静水中, 以2500磅/吋²的压力热压处理24小时。经热压处理后的样品如发现有肉眼可见的破坏痕迹时, 则该炉号报废。

(d) **拉拔調尺** 挤压棒通过碳化钨拉模(使用专门的润滑剂*)可使直径调节到 0.5000 ± 0.0002 吋。

(e) **矯直** 拉拔调尺后的芯体,在滚动辊杆矫直机上进行矫直,并由切割锯切割成最后长度,即 87500 ± 0.020 吋。

(f) **芯体潤滑** 为了进行组装,先用溶剂清洗芯体,然后将多数芯体都涂上一层薄的悬浮在酒精中的胶状石墨粉,以帮助将这些芯体装进包壳管中。

(g) **包壳管測量** 全面检查锆-2合金管的内外表面的裂缝及缺陷。曾经得到几批外表面没有缺陷的管子,但其中90%的管子内表面有裂纹,其深度达管壁的1/3。对合格的包壳管进行蒸发脱脂,水蒸气清洗,然后用电子记录仪测量整根管各部位的内径和外径。对于内径不均匀的管子要用型锻方法校正其尺寸。

(h) **型鍛校尺** 有几批包壳管虽然外径均匀,但内径变化达 0.004 吋,所以要将这些管子通过不定心转动的不锈钢心轴进行型锻,以便使管的内径沿长度的变化校正到 ± 0.0007 吋之内。

(i) **矯直** 型锻校尺时,包壳管会产生弯度,所以要通过旋转辊杆矫直机使弯度消除。

(j) **气压計檢驗** 全部包壳管都要用记录压力计进行测量,要在整个长度上,每隔2吋距离就在不同方向上测量管的内径和外径,其测量精度可达 0.0002 吋。

(k) **管的最終清洗** 将已检验合格的管子切至规定的长度,管端用平底扩孔钻扩孔,使端盖可以嵌入。进行蒸发脱脂后,还要用蘸酒精的布将整个管子擦拭干净。

(l) **焊接** 用不锈钢丝刷将焊接区刷干净,然后把经过脱脂的端盖嵌入管内。以大约18根管为一批,放进焊接小室中,进行抽空和充氩,并在惰性气氛中,用钨电极将一端焊合。

(m) **最后焊接準備** 在端盖上打上标记号后,用铝箔盖住包壳管的开口端,以防止沾污,然后将管装进芯体装料手套箱的塑料袋中。

(n) **装料** 把放在装料手套箱内的铝-铀合金芯体与手套箱外面的包壳管排列起来。通过塑料袋转换器将芯体缓慢地插入管中,然后把塑料袋密封、剪断,并使装好料的包壳管与手套箱脱离,再去掉装料管上的密封塑料套和铝箔,最后将管开口端用酒精去污,并用塑料过滤塞塞紧。

(o) **焊接** 按焊接第一个端盖的条件焊接第二个端盖,但装料管要先通过过滤塞进行抽空,以防止污物泄漏,待焊箱充满氦气后,就去掉过滤塞,并在氦气气氛下焊接端盖。焊接好的燃料棒从焊箱中取出来,并测量 α 沾污。

(p) **檢漏** 把焊好的燃料棒放进小室后,将小室抽空到 10^{-3} 毫米汞柱,并立即用质谱仪测量,如测出管漏氦气,则该管即告报废。

(q) **超声波檢驗** 用超声波检查已装好料的燃料棒包壳时,曾发现最初几批包壳管有缺陷,但当管的质量改善以后,就不再进行这种检验了。

(r) **浸蝕** 每根管的焊接区都要用不锈钢丝刷清理,那怕有一点轻微的变色

* Oakite No. 12. Oakite Products, Inc., 19 Rector St., N.Y. 6, N.Y.

也要去掉。在底部端盖的柄上有一个固定绕丝的钻孔。整个燃料棒要用酒精擦洗，使之清洁。通过浸蚀要去掉棒表面上0.0015至0.002吋厚的一层污物，因为这些污物会降低燃料棒的抗腐蚀性能。浸蚀过程包括：

①在 27-30℃ 于 40% HNO_3 、4% HF 及去离子水（至少为 300000 欧姆）的溶液中，不断搅动浸蚀 7 分钟；

②在 40℃ 于 15%（重量）硝酸铝 $[\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}]$ 和去离子水的溶液中，强力搅拌洗涤；

③用 50℃ 的活水冲洗；

④用去离子水（至少为 300000 欧姆）冲洗。最终清洗后，将棒擦干，测量 α 污染。

（s） **检漏** 浸蚀后的燃料棒要进行氦气检漏，以确保包壳的密封性。

（t） **热压处理** 浸蚀过的棒在 400℃ 于 1500 磅/吋² 压力下，进行 36 小时的蒸汽热压处理，使之生成一层氧化锆保护薄膜，同时用以检验包壳的抗腐蚀性及其密封性。如果没有生成均匀的黑色氧化膜，则这种棒是不合格的。用喷沙及再浸蚀方法去掉这种不合格的薄膜以后，可再进行热压处理，但这种处理最多允许反复两次。

（u） **绕丝** 经过热压处理的、直径为 0.072 吋的锆-2 合金丝，以螺旋方式绕在 19 根棒构成一组的 12 根棒上，其中 6 根棒按顺时针方向绕，而另外 6 根棒则按反时针方向绕。首先将绕丝穿进一端端盖柄上的孔中，并用点焊法焊住，然后以 10 吋的螺距，5 磅的拉力缠绕在棒上，最后，丝的末端穿进另一端端盖柄上的孔中，并在该处焊接固定。恰当的绕丝和拉引对防止绕丝的松散是很重要的。

（v） **组装** 将单体诸棒装配在两端的锆合金托架上，托架的作用是使燃料棒集中，以便放入反应堆管内，同时使燃料棒连接在吊架的连接棒上，用锆合金螺母把中心棒固定在顶部及底部带螺纹的端盖上，而其余的棒则用销钉穿过焊在顶端托架上的端盖柄来固定，这样，这些燃料棒在底端托架上就可以自由膨胀和收缩。组装好的元件组束用四根锆合金条用力缠绕两圈，然后将每根合金条各自点焊在一起。

18-2 铀-铝合金

添加合金化元素（铝或镓）使 δ 相稳定的铀金属，已作为快中子反应堆燃料用于洛斯-阿拉莫斯科学实验室的克莱门丁反应堆和国立阿贡实验室的 I 号实验性增殖反应堆（EBR-I）中。克莱门丁堆是第一个用铀作燃料的反应堆，也是第一个快中子反应堆。曾用稳定 δ 铀加工成 35 根棒状元件，表面有厚 0.003 吋的镍层，装在钢包壳里。I 号实验性增殖反应堆（EBR-I）的 IV 号堆芯燃料是 Pu-1.25%（重量）Al 合金，曾用约 45 公斤的铀制造这种铀装料。第 17 章中叙述的方法，一般也适用于制造稳定 δ 铀合金燃料。下面将详细介绍为 I 号实验性增殖反应堆（EBR-I）IV 号堆芯专门生产的燃料的制备方法。