

## РАЗЛИЧИЕ СТРУКТУРЫ И СВОЙСТВ ПОВЕРХНОСТЕЙ ШЕСТИГРАННОГО ЧЕХЛА ОТРАБОТАВШИХ ТВС РЕАКТОРА БН-350

*О.П. Максимкин, О.В. Тиванова, Л.Г. Турубарова*  
 Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан;  
 E-mail: [maksimkin@inp.kz](mailto:maksimkin@inp.kz), факс: +7 (3272) 262639

Исследованы конструкционные материалы, которые эксплуатировались в быстром реакторе при сравнительно низких температурах (280...420 °С). Материалы облучены до максимальных повреждающих доз в интервале 0,25...59 сна и затем находились в воде бассейна-отстойника от 4-х до 8 лет. Эксперименты по исследованию отработавших сборок выявили тот факт, что изменение структуры и свойств сталей неодинаково не только по высоте сборки и ширине граней, но и по толщине стенки чехла. В последнем случае различие особенно велико на внешней и внутренней поверхностях стенки в тепловыделяющих сборках, где использовали делящийся уран.

### ВВЕДЕНИЕ

Известно, что в качестве чехлов ТВС первого промышленного реактора на быстрых нейтронах БН-350 в свое время использовали шестигранные трубы (размером «под ключ» 96 мм и толщиной стенки 2 мм), выполненные из аустенитных нержавеющей сталей 12Х18Н10Т и 08Х16Н11М3 в состоянии механико-термической обработки (МТО): после профилирования проводили стабилизирующий отжиг при температуре 800 °С в течение 1 ч.

Начиная с 2001 года, в рамках декомиссии реактора БН-350 проводились комплексные материаловедческие работы, направленные на характеризацию состояния материала чехлов после длительного облучения и хранения в воде. Исследовали конструкционные материалы, которые эксплуатировались в быстром реакторе при сравнительно низких температурах (280...420°С), облучены до максимальных повреждающих доз в интервале 0,25...59 сна и затем находились в воде бассейна-отстойника от 4-х до 8 лет.

В результате было показано, в частности [1], что микроструктура и физико-механические свойства нержавеющей сталей отличаются в различных участках чехла по его периметру и высоте. Например, имеются существенные различия фазового состава, микротвердости, плотности и распухания сталей в области ребер по сравнению с серединой грани чехла.

Предварительные исследования показали [2] наличие существенных различий в коррозионной повреждаемости наружной и внутренней поверхностей стенки чехла. В литературе имеется еще ряд разрозненных сведений о различиях внутренней и наружных поверхностей чехла (см., например, [3]).

В настоящей работе исследования были сфокусированы на выявлении и установлении возможных причин различий в структуре и свойствах внутренней и внешней сторон стенки чехлов ТВС, экранного и топливного типа реактора БН-350.

### МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В табл. 1 и 2 приведены элементный состав, параметры облучения и длительность мокрого хранения исследованных сталей. Образцы для исследований изготавливали из пластин размером 50x10x2 мм, которые вырезали из граней чехлов на различных высотах (рис. 1).

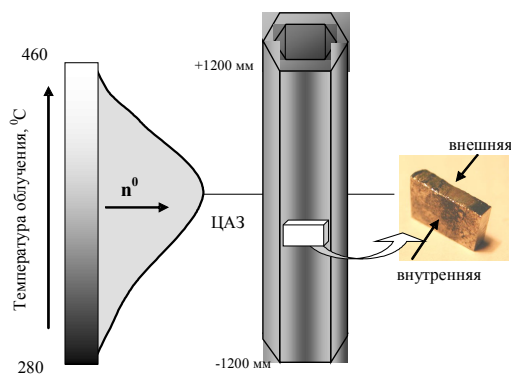


Рис. 1. Схема облучения и разделки чехла тепловыделяющей сборки реактора БН-350 (стрелками показаны исследуемые поверхности)

Металлографические исследования облученных образцов выполняли на оптическом микроскопе Neophot-2. С целью изучения перераспределения элементов в сталях использовали растровый электронный микроскоп Amgey-1200 с рентгеновским анализатором. Изменение прочностных свойств материала в результате облучения и последующего мокрого хранения изучали с помощью микротвердомера ПМТ-3 при нагрузке на индентор 50 г. Намагниченность образцов определяли с помощью феррозондового измерителя. Особое внимание уделялось изучению состояния внешней и внутренней поверхностей стенки чехла ТВС. При этом принималось во внимание то, что в процессе длительной экс-

платации жидкий натрий мог взаимодействовать с материалом стенки, приводя к селективному удалению некоторых элементов из состава стали [2],

влияя тем самым на коррозионную и механическую стойкость.

Таблица 1

Элементный состав нержавеющей сталей

Материал	Состав, мас. %											
	Fe	Al	C	Cr	Ni	Mo	Nb	Ti	Si	Mn	Mg	V
12X18H10T	Осно- ва	–	0,12	17,0	10,66	–	–	0,5	0,34	1,6	–	–
08X16H11 МЗ	Осно- ва	–	0,08	17,5	11,1	1,65	0,05	–		1,5	–	–

Таблица 2

Параметры облучения и хранения в воде нержавеющей сталей

Материал	Сборка БН-350	Уровень от ЦАЗ, мм	Максимальная повреждающая доза, сна	Рабочая температура, Т °С	Время хранения в воде, год
12X18H10T (аналог AISI 321)	Н 214(I) экранный ТВС, тип I	-375			~8
		+75	12,3	280..400	
		+375			
	ЦЦ-19 топливная, ТВС	-160	55,7	330	~8
		0	58,92	350	
		+160	55,4	370	
+300		46,6	405		
08X16H11M3 (аналог AISI 316)	Н 214(II) экранный ТВС, тип I	0	15,6	337	~4
		-500	7,08	309	
		-900	1,27	281	
		-1200	0,25	280	
	В300, внутренний экран ТВС	-500	10,8	302	
		+500	11	346	
	В337, внутренний экран ТВС	-500	11,9	305	

## РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

### РАЗЛИЧИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ ВНЕШНЕЙ И ВНУТРЕННЕЙ СТОРОНЫ СТЕНКИ ЧЕХЛА

В результате проведенных металлографических исследований установлено, что структура облученной нейтронами стали 08X16H11M3 оказалась неоднородной не только по ширине и высоте грани, но также и по толщине стенки чехла. При этом зерна на внутренней и внешней поверхности стенки, как правило, мельче, чем в середине. Это хорошо видно в торцевом сечении стенки чехла ТВС Н214(II) на отметке -1200 мм. На отметке «0» средняя величина зерна становится значительно больше, чем на отметке -1200 мм. При этом различие между структурами внутренней и внешней стороны сохраняется, но существенно уменьшается.

Необходимо подчеркнуть, что в стали 12X18H10T неоднородность структуры по толщине стенки чехла наблюдается уже в исходном (до облучения) состоянии (рис. 2,в). Очевидно, что основной причиной тому являются технологические операции на стадии изготовления чехла.

При исследовании образца, вырезанного из обработанной сборки Н214(II), методом послойного снятия удалось выявить изменение структуры стали 08X16H11M3 по толщине стенки чехла. Установлено, что при одинаковых условиях подготовки металлографических шлифов (температура и время травления) на наружной поверхности стенки чехла зерна светлые и ограничены сферическими выделениями, скорее всего  $Cr_{23}C_6$ , а также различимы включения и фазы внедрения на светлом фоне зерна (см. рис. 2,а). В то время как на внутренней стороне чехла ТВС цвет поверхности большинства зерен черный и представляет субструктуру (рис. 2,б), вероятнее всего, в составляющие которой входят выделения  $\sigma$ -фазы. Гидростатическим взвешиванием установлено, что плотность стали 08X16H11M3 с внешней стороны на 2,5 % ниже, чем средняя плотность по всей толщине.

Обращает на себя внимание следующее важное обстоятельство: после электролитического травления на лицевой поверхности (топливная сборка ЦЦ-19 отметки 0, +160, +300 мм) выявились чередующиеся светлые и темные полосы параллельно ребру (рис. 3,а), свидетельствующие о различной степени протравленности зерен.

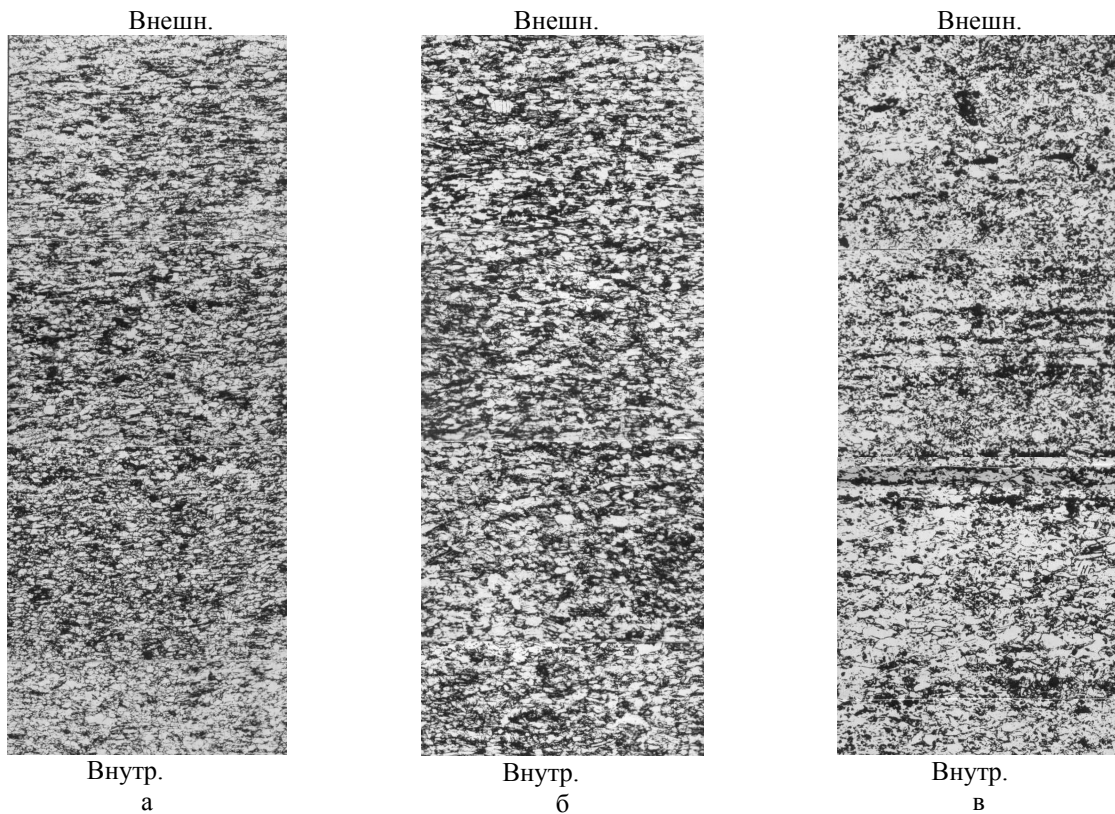
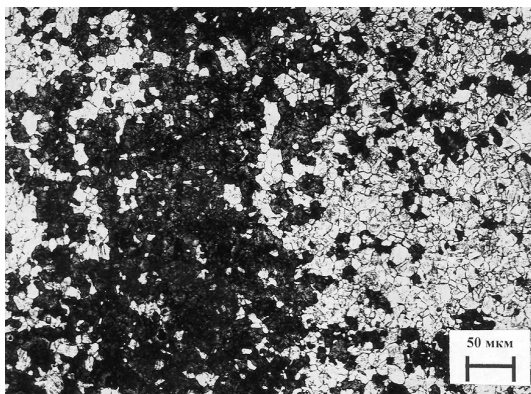
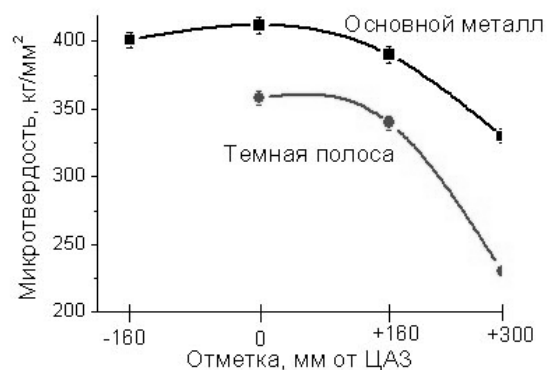


Рис. 2. Сборка Н214/І. Различия микроструктуры по толщине стенки чехла:  
 а – сталь 08Х16Н11М3, сборка Н-214(ІІ), отметка -1200 мм; б – сталь 08Х16Н11М3, сборка Н-214(ІІ),  
 отметка 0мм; в – сталь 12Х18Н10Т, исходный образец, х 200



а



б

Рис. 3. Особенности структуры (а) и прочности (б) внешней поверхности стенки чехла ТВС ЦЦ-19

При большом увеличении видно, что в «темных» зернах присутствует множество линий скольжения, особенно в местах стыков границ. Причина появления светлых и темных полос не установлена, но оказалось, что они имеют также различную твердость (см. рис. 3,б).

#### РАЗЛИЧИЕ МИКРОТВЕРДОСТИ СТОРОН СТЕНКИ ЧЕХЛА

Измерения микротвердости показали различную степень прочности приповерхностных слоев стенки чехла ТВС. На рис. 4 показано как изменяется

твердость стали вдоль грани чехла на обеих поверхностях стенки. Видно, что вблизи центра грани твердость обеих поверхностей практически одинакова, тогда как вблизи ребер соотношение твердостей различается: около одного из них прочность внутренней стороны чехла больше, чем наружной (на ~15%); на другом ребре ситуация прямо противоположная. Возможно этот эффект является результатом неодинаковости температур различных граней чехла во время облучения.

Аналогичный эффект различия твердости внутренней и внешней стороны стенки после облучения наблюдали, изучая образец стали 12Х18Н10Т, вы-

резанный с отметки -900 мм сборка Н214(1). В этом случае прочность внутренней поверхности была выше на ~10%.

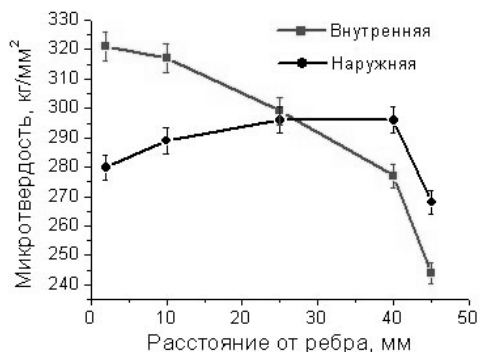


Рис. 4. Сталь 12Х18Н10Т. Распределение микротвердости вдоль грани по внутренней и наружной поверхностях чехла ТВС ЦЦ-19 (отметка +300 мм от ЦА3)

В другом эксперименте при изучении твердости образца облученной стали 08Х16Н11М3 (сборка Н214(II), отметка -500 мм), постепенно очищая с помощью полирования материал с внешней поверхности, обнаружили, что по мере утонения образца микротвердость стали уменьшалась и на расстоянии 0,6 мм от внутренней поверхности она составила 360 кг/мм<sup>2</sup>, в то время как значение Нц на внешней поверхности равнялось 410 кг/мм<sup>2</sup> (рис. 5).

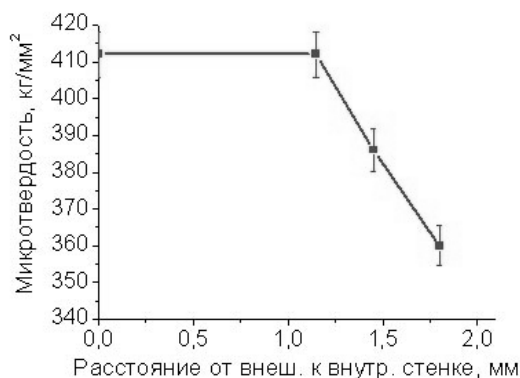
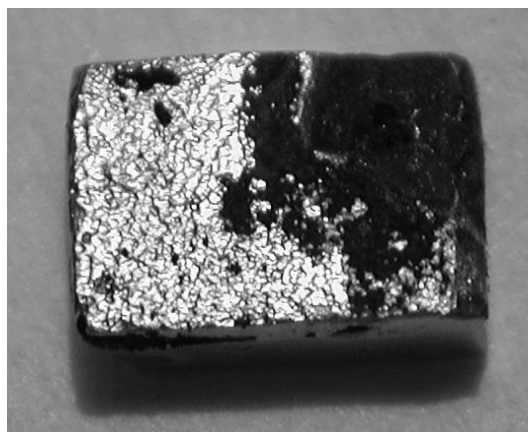


Рис. 5. Сталь 08Х16Н11М3. Распределение микротвердости по толщине (от внешней к внутренней стороне) стенки чехла (ТВС Н214 (2) отметка -500 мм)

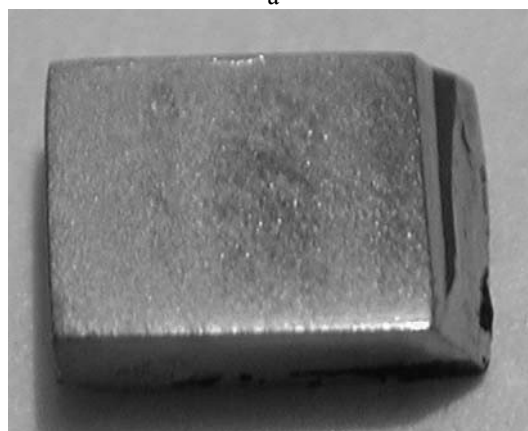
### РАЗЛИЧИЕ КОРРОЗИОННОЙ ПОВРЕЖДАЕМОСТИ СТенок ЧЕХЛА ТВС

Визуальное исследование состояния поверхности отработанных чехлов ТВС реактора БН-350 после их длительного хранения в воде показало, что на всех исследованных сборках, облученных до максимальной повреждающей дозы 58,9 сна и хранившихся в воде ~8 лет, имеются следы коррозии. Внутренняя сторона, как правило, шершавая, коричневая (бурая), как бы покрыта пленкой, которая легко удаляется электрополировкой. Буро-коричневый цвет

обычно имеет гидроокись большого количества закиси железа FeO (рис. 6).



а



б

Рис. 6. Различие коррозионной повреждаемости на внешней и внутренней поверхности чехла ТВС ЦЦ-19, 0 мм отметка от ЦА3

В частности, осмотр внешнего вида образцов стали 12Х18Н10Т чехла ТВС ЦЦ-19 (отметки -160, 0, +160, +300 мм от ЦА3) показал, что в результате облучения и последующего мокрого хранения толщина коррозионного слоя внешней и внутренней сторон стенки шестигранного чехла неодинакова (рис. 7,а): на внутренней стороне, которая интенсивно омывалась натрием, толщина коррозионного слоя существенно больше, чем на внешней стороне и достигает в ряде случаев 25 мкм. Детальное изучение прокорродировавшего внутреннего слоя показало, что в некоторых его местах наблюдается проявление несплошностей в виде межкристаллитной коррозии на внешней стороне и глубоких коррозионных каверн на внутренней стенке чехла ТВС. Таким образом, в чехлах сборок топливного типа можно выделить два типа коррозии: поверхностный относительно ровный коррозионный слой (см. рис. 6,а) и глубокие коррозионные каверны на внутренней стенке чехла (см. рис. 7,б).

Металлографическое исследование коррозионной повреждаемости чехлов ТВС различных типов показало, что по сравнению с чехлами сборок экранного типа толщина прокорродировавшего слоя, включая коррозионные каверны на внутренней поверхности чехла топливной ТВС ЦЦ-19, может

распространиться на всю толщину чехла (ЦЦ-19 от-метка +300 мм).

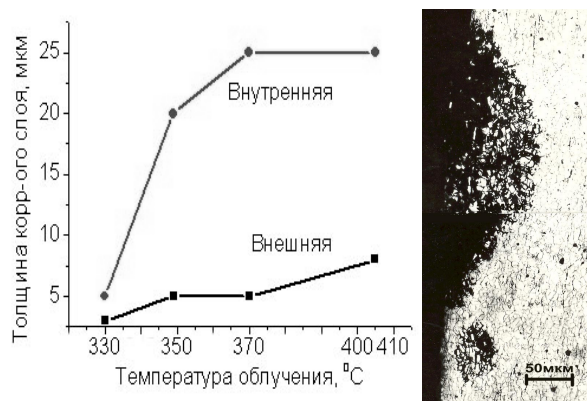


Рис. 7. Изменение толщины коррозионного слоя на внутренней и внешней поверхностях стенки чехла ТВС ЦЦ-19 (сталь 12X18H10T) – а; коррозионная каверна на внутренней стенке чехла (отметка 0 мм) – б

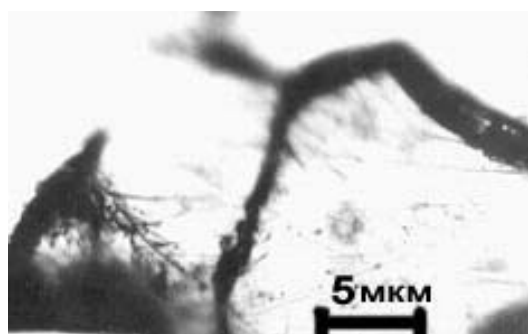
Для экранной сборки Н214/II обнаружено, что коррозия может носить как внутрикristаллитный, так и межкristаллитный характер (рис. 8), причем в большинстве случаев не превышает 3...5 мкм.

С использованием метода рентгенодисперсионного микроанализа проведены работы по изучению элементного состава облученных стальных образцов на внутренней и внешней поверхностях. Отдельно исследовали элементный состав коррозионных слоев. Анализировалось содержание таких элементов, как Cr, Ni, Ti, Fe, наиболее эффективно влияющих на физико-механические свойства стали.

Исследование элементного состава коррозионных слоев показало, что содержание никеля и хрома практически одинаково на черной (внешней) и коричневой (внутренней) стороне чехла и соответствует их содержанию в теле зерен. В то же время обнаружено, что на внешней стороне стенки в отличие от внутренней присутствует титан в количестве 0,15%. После удаления коррозионного слоя проведено исследование элементного состава поверхности образца стали 12X18H10T (ТВС Н214/1, отметка -375 мм от ЦА3).



а



б

Рис. 8. Коррозионное растрескивание на поверхности чехла ТВС, изготовленного из стали 08X16H11M3: а – микротрещины на внешней (лицевой) поверхности образца стали ТВС Н214(II) от-метка 0 мм; б – межкristаллитная коррозия на внутренней поверхности стенки чехла ТВС В-337 от-метка -500 мм

Усредненные результаты микроанализа приведены в табл. 3, из которой видно, что содержание основных легирующих элементов на светлой и коричневой поверхностях значительно отличаются. Так, содержание Ni на внутренней поверхности стенки чехла ниже в среднем на 1,9 вес.%, чем на внешней, тогда как содержание хрома, наоборот, – выше на внутренней поверхности, чем на внешней на 0,5%. Содержание Ti также выше на внутренней поверхности чехла.

Таблица 3

Элементный состав на внешней и внутренней поверхности чехла тепловыделяющей сборки (сталь 12X18H10T)

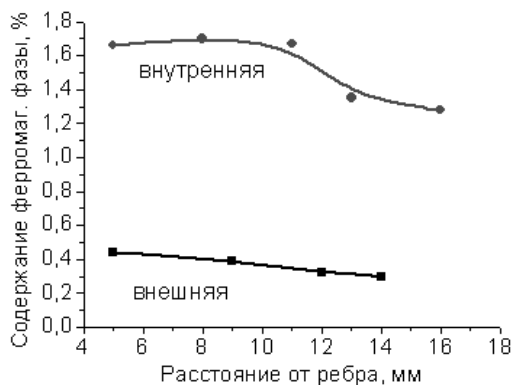
Отметка	Элемент, вес.%				Поверхность чехла
	Cr	Ni	Fe	Ti	
-375 мм	17,09	12,39	69,78	0,47	Внешняя (без оксидного слоя)
	17,78...17,9	10,4	71,16	0,7...0,8	Внутренняя (коричневая)
+75 мм	18...21	9,2	69,2	1,1...1,3	Внутренняя (коричневая)
+375 мм	18...20	7...8	71,4	0,9...1,0	Внутренняя (коричневая)

Изменение элементного состава было обнаружено также на поверхностях стенки чехла ТВС ЦЦ-19 на отметке +160 от ЦА3: на одной из сторон содер-

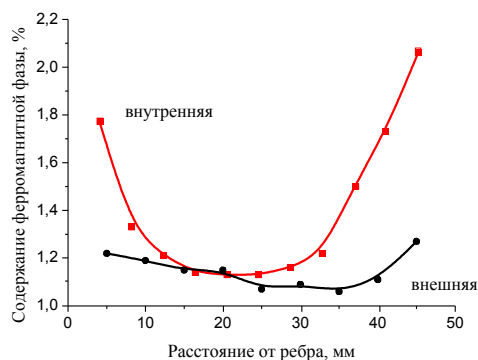
жание Fe – 71%, Cr – 18%, на другой поверхности содержание железа снизилось до 61 %, а хрома – увеличилось до 27 %.

## ОБРАЗОВАНИЕ ФЕРРИТНОГО СЛОЯ НА ВНУТРЕННЕЙ ПОВЕРХНОСТИ ЧЕХЛА

Установлено, что после облучения и длительного хранения образцы стали 12Х18Н10Т сборки Н214 (1) и ЦЦ-19 намагничены по объему. Причем в образцах, вырезанных из сборки ЦЦ-19 в отличие от сборки Н214(1) степень намагниченности внутренней и внешней сторон различна (рис. 9). Более высокая намагненность внутренней стороны чехла может быть результатом взаимодействия натрия с по-



а



б

Рис. 9. Различия в содержании феррофазы на внутренней и внешней поверхностях чехла ТВС ЦЦ-19 отметка -160 9x4x2 мм (а) и +300 45x10x2 мм (б) мм от ЦАЗ

В исследованном диапазоне температур облучения (уровни по высоте чехла) обнаружено увеличение содержания ферромагнитной фазы с ростом температуры (рис. 10).

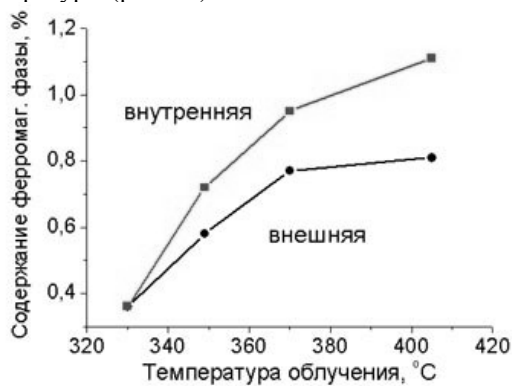


Рис. 10. Различия в намагненности внутренней и внешней поверхностей стенки чехла ТВС ЦЦ-19 в зависимости от температуры облучения

Исследование торцевой поверхности образца показало, что на внутренней поверхности чехла образовался ферромагнитный слой, толщина которого не превышала 500 мкм. Для более точной оценки его толщины образец, вырезанный из центра грани, был подвергнут послойной электролитической полировке. При этом каждый раз замерялось содержание феррофазы в нескольких точках, и в этих же точках промерялась толщина образца. Образец утонялся до тех пор пока среднее содержание феррофазы в одной из точек не вышло на постоянное значе-

верхностью при более высокой скорости течения и температуре облучения.

В образце, вырезанном из середины грани (см. рис. 9,а) содержание феррофазы на внутренней поверхности в 2 раза выше, чем на внешней. При сканировании вдоль длины образца было обнаружено, что количество ферромагнитной фазы монотонно уменьшается как на внутренней, так и на внешней сторонах чехла (см. рис. 9,б) от ребра к середине грани.

ние, которое приравнялось к содержанию, среднему по объему ~0,35...0,4% (рис. 11).

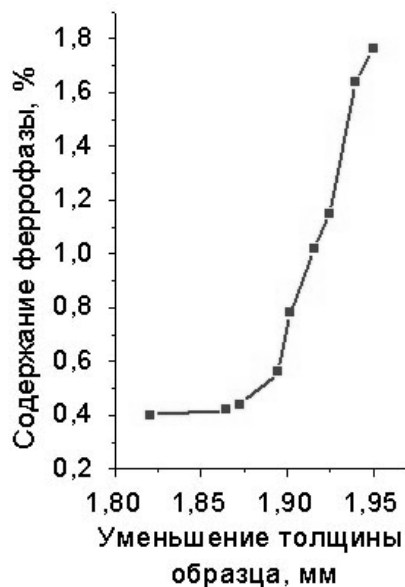


Рис. 11. Уменьшение содержания феррофазы при послойном снятии материала путем шаговой электролитической полировки (точки на кривой) на внутренней поверхности образца ТВС ЦЦ-19 отметка 160 мм от ЦАЗ

Для установления природы ферромагнитного слоя образец, вырезанный из середины грани чехла, был подвергнут отжигу от 320 °C с шагом 40...50 °C, при этом каждый раз замерялось содержание феррофазы на внутренней и внешней поверхностях чехла.

Установлено (рис. 12), что на внешней поверхности чехла содержание феррофазы уменьшалось вплоть до 650...670 °С, с ростом температуры оно составляло ≤0,05%. В то же время на внутренней поверхности чехла количество феррофазы уменьшалось до температуры 820...850 °С. Выше температуры 850 °С содержание феррофазы по всему образцу составило ≤0,05%.

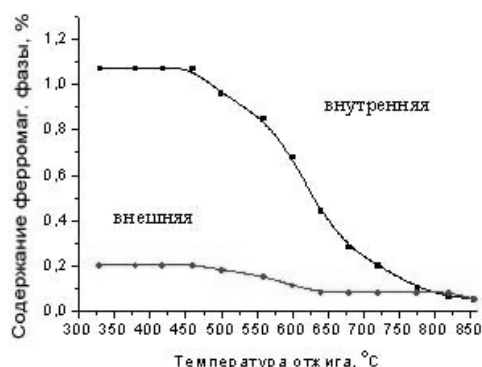


Рис. 12. Уменьшение содержания феррофазы на внутренней и внешней поверхностях при отжиге образца ТВС ЦЦ-19 отметка 160 мм от ЦАЗ

В работе [4] было показано, что в стали 12Х18Н10Т, длительно эксплуатировавшейся в активной зоне реактора Бор-60, обнаружено наличие ферритной альфа-фазы в количестве 30...35% на поверхности, находившейся в контакте с натриевым носителем.

Проведенное после электролитического удаления поверхностного слоя рентгенографическое изучение образца показало наличие слабого рефлекса 110 ОЦК-фазы в объеме образца.

Таким образом, можно предположить, что ферромагнитный слой в 200 мкм на внутренней поверхности образовался как в результате влияния температуры и жидкого натрия на элементный состав стали, так и вследствие изменения фазового состава стали. В то же время намагниченность объема материала чехла объясняется образованием ферромагнитной альфа-фазы в результате облучения. Необходимо отметить, что после вырезки пластин 50х10х2 мм из грани чехла ТВС ЦЦ-19 пластины изогнулись так, что сжимающие напряжения на внутренней стороне и растягивающие на внешней – также могли индуцировать мартенситное  $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение. В то же время в образцах ТВС Н214 (1) содержание феррофазы было около 0,2 %, изгиб пластин зафиксирован не был.

#### РАЗЛИЧИЕ ПОВЕДЕНИЯ СТЕНОК ЧЕХЛА ПРИ МЕХАНИЧЕСКИХ ВОЗДЕЙСТВИЯХ

После механической вырезки пластины из чехла ТВС ЦЦ-19 (20х2х0,33 мм) она изогнулась внешней поверхностью стенки наружу. Отклонение от прямой линии составило 700...8500 мкм. Последующее одноосное растяжение таких пластин показало, что видимая локализация деформации и разрушение

начинаются, как правило, с внутренней поверхности и распространяются по толщине стенки к ее внешней поверхности.

В плоском образце стали, вырезанном с отметки +500 мм ТВС В300, наблюдается аналогичная картина, причем разрушение носит межкристаллитный характер (рис. 13).

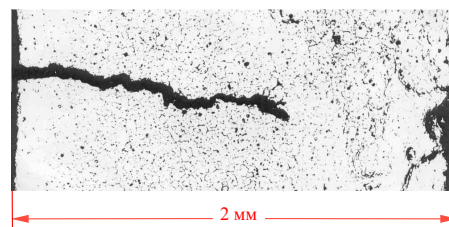


Рис. 13. Магистральная зернограницная трещина (от внутренней поверхности) в облученной нейтронами деформированной стали 08Х16Н1МЗ (ТВС В300, отметка +500 мм). Торцевая поверхность стенки чехла

#### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые исследовано различие влияния нейтронного облучения и последующего мокрого хранения на структуру и свойства внешних и внутренних приповерхностных слоев стенки чехлов ТВС реактора БН-350, изготовленных из аустенитных нержавеющей сталей.

Эксперименты по исследованию отработавших сборок выявили тот факт, что изменение структуры и свойств сталей неодинаково не только по высоте сборки и ширине граней, но и по толщине стенки чехла. В последнем случае различие особенно велико на внешней и внутренней поверхностях стенки в тепловыделяющих сборках, где использовали делящийся уран.

Наличие существенных различий в коррозионной повреждаемости поверхностных слоев стенки чехла может сыграть важную роль в обеспечении безопасного хранения отработавших ТВС в бассейнах-отстойниках.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. О.П. Максимкин. Анализ результатов и новая концепция исследования материалов тепловыделяющих сборок реактора БН-350 //Сборник материалов международной конференции «Ядерная и радиационная физика», (26-29 сентября 2005 г.), Алматы, 2006, т. 1, с. 98–134.
2. О.П. Максимкин. Радиационные эффекты в конструкционных материалах атомных реакторов ВВР-К и БН-350 //Материалы 9-й Международной конференции, 4-7 июня 2007 г. Алматы: ИЯФ НЯЦ РК, 2001, с. 470–489.
3. М.Д. Абрамович, С.Н. Вогинов, А.Г. Иолтуховский. Радиационное материаловедение на АЭС. М.: «Энергоатомиздат», 1984, 136 с.
4. В.К. Шамардин, З.Е. Островский, А.М. Печерин, В.М. Косенков, В.В. Яковлев, Ф.В. Рисова-

ная. Исследование чехла экранной сборки Э-26 после 22-летней эксплуатации в реакторе БОР-60 //Сб. докладов V Межотраслевой конференции по реакторному материаловедению. Дмитровград, 1998, т. 2, ч. 2, с. 25–40.

5. К. Фукуя, М. Накано, К. Фуджи, Т. Торимару. Влияние вызванной облучением сегрегации по границам зерен стали на коррозионное растрескивание под напряжением //Атомная техника за рубежом. 2005, №2, с. 20–25.

## **РОЗХОДЖЕННЯ СТРУКТУРИ Й ВЛАСТИВОСТЕЙ ПОВЕРХОНЬ ШЕСТИГРАННОГО ЧОХЛА, ЩО ВІДРОБИЛИ, ТВС РЕАКТОРА БН-350**

*О.П. Максимкин, О.В. Тиванова, Л.Г. Турубарова*

Досліджено конструкційні матеріали, які експлуатувалися у швидкому реакторі при порівнюючі низьких температурах (280...420 С). Матеріали опромінені до максимальних доз, що ушкоджують, в інтервалі 0,25...59 сна й потім перебували у воді басейну-відстійника від 4-х до 8 років. Експерименти по дослідженню складань, що відробили, виявили той факт, що зміна структури й властивостей сталей неоднаково не тільки по висоті складання й ширині граней, але й по товщині стінки чохла. В останньому випадку розходження особливо велике на зовнішній і внутрішній поверхнях стінки в тепловиділяючих складаннях, де використовували уран, що ділиться.

## **DIFFERENCES IN STRUCTURE AND PROPERTIES BETWEEN INNER AND OUTER FACES OF A BN-350 SPENT FUEL ASSEMBLY HEXAGONAL SHROUD**

*O.P. Maksimkin, O.V. Tivanova, L.G. Turubarova*

Influences of neutron irradiation (0,25...59 dpa) and further wet storage (4-8 years) on structure and properties of both inner and outer walls of the BN-350 fuel assembly shrouds made of stainless steels were investigated for the first way. The experiments on spent assembly studying indicated that structure and properties of steels changed in a different way as throughout the height as throughout the thickness of different shroud walls. Besides, the distinction between inner and outer faces of a shroud is especially great for assemblies earlier containing fissible uranium.