Т. 64, № 2-2 ФИЗИКА 2021

УДК 621.039.54 DOI: 10.17223/00213411/64/2-2/142

 $M.С. \Phi E Д O P O B^{1,2}, Д.В. 3 O 3 У Л Я^{I}, А.Н. ЖИГАН О B^{2}, В.Л. С О \Phi P O H O B^{2}$

ПРИМЕНЕНИЕ ТЕХНОЛОГИИ КАРБОТЕРМИЧЕСКОГО СИНТЕЗА ПРИ ПРОИЗВОДСТВЕ СМЕШАННОГО НИТРИДА УРАНА И ПЛУТОНИЯ

Представлен обзор и краткий анализ применения технологии карботермического синтеза при производстве смешанного нитрида урана и плутония. Акцент поставлен на применении данного метода при реализации проекта «Прорыв». Показаны опыт внедрения данной технологии на площадке Акционерного общества «Сибирский химический комбинат», а также планируемая технологическая схема получения смешанного нитрида урана и плутония на модуле фабрикации-рефабрикации опытно-демонстрационного энергетического комплекса.

Ключевые слова: карботермический синтез, уран, плутоний, нитридное топливо, опытно-демонстрационный энергетический комплекс.

Введение

Инновационно-технологическое развитие ядерной энергетики предусматривает решение одной из главных задач – разработка и создание ядерных реакторов, которые соответствуют принципу «естественной безопасности (самозащищенности)» [1]. Для решения этой задачи изучен вопрос перехода от оксидного топлива к высокоплотному топливу с повышенной ядерной концентрацией делящихся изотопов. В качестве наиболее возможного топлива для адаптации технологий и оборудования, разработанных для изготовления и переработки оксидного топлива, является нитридное топливо. Нитридное топливо как потенциальное ядерное топливо для реакторов на быстрых нейтронах начали серьезно рассматривать лишь в 1980–1990 гг. ХХ в. Наибольший опыт по производству смешанного уран-плутониевого нитридного (СНУП) топлива накоплен в Европейском институте трансурановых элементов в Карлсруэ, Германия. Значительный объем работ выполнен в Индии, Америке, Японии и, конечно же, в России [2, 3].

Применение СНУП-топлива обосновывают следующие достоинства [4]: содержание делящегося изотопа и теплопроводность значительно выше оксидного, температура в центре нитридного тепловыделяющего элемента (ТВЭЛ) намного меньше оксидного (при одинаковой скорости деления и геометрии ТВЭЛ), а следовательно, и температурный градиент, величина которого влияет на поведение топлива и распределение продуктов деления в нем, будет значительно меньше; важны также совместимость топлива с теплоносителем и простота радиохимической переработки облученного топлива.

В 2010 г. ГК «Росатом» инициировал работы по созданию новой технологической платформы атомной отрасли на основе быстрых реакторов и ЗЯТЦ – проект «Прорыв» [5]. В рамках этого проекта, во-первых, предполагается создать проекты двух типов реакторных установок: коммерческого быстрого реактора с натриевым теплоносителем мощностью 1200 МВт (далее – БН-1200) и опытно-демонстрационного реактора со свинцовым теплоносителем мощностью 300 МВт (далее – БРЕСТ-ОД-300). Во-вторых, предстоит создать совершенно новое топливо для них – смешанное нитридное уран-плутониевое [2, 6–8]. В-третьих, решить проблемы отработавшего ядерного топлива. С 2012 г. проект «Прорыв» реализуется на площадке Акционерного общества «Сибирский химический комбинат» (далее – АО «СХК»).

Поэтому изучение СНУП-топлива, а также методов получения данного вида топлива является актуальной задачей.

Карботермический синтез нитридов урана и плутония

Исторически первым способом для получения нитридного топлива был выбран металлгидридный [3, 9]. Однако данный способ получения неэкономичен, связан с решением дополнительных технологических проблем и поиском способов обеспечения безопасности вследствие использования водорода, который является взрывопожароопасным реагентом [4].

Поэтому дальнейшие эксперименты по получению СНУП-топлива стали проводить с использованием метода карботермического синтеза (КТС). Указанный способ является наиболее проработанным с точки зрения промышленного освоения и имеет преимущество в использовании в ка-

честве исходных материалов оксидов, являющихся продуктом действующих предприятий радиохимической переработки облученного топлива [10].

Из недостатков следует отметить необходимость контроля примесей в получаемых порошках, а также соблюдение заданной газовой атмосферы в печи.

Суммарная реакция карботермического восстановления:

$$UO_2 + PuO_2 + (2 + x) C + ((1 - y)/2) N_2 \rightarrow UPu (N_{1-y}, C_y) + zC + CO\uparrow).$$
 (1)

Реакция удаления избыточного углерода:

$$2zH_2 + zC \rightarrow zCH_4\uparrow. \tag{2}$$

После чего происходит перевод карбонитрида в высший нитрид (полуторный):

$$UPu(N_{1-y}, C_y) + 1/2(y + 1/2) N_2 \rightarrow UPuN_{1.5} + yC.$$
 (3)

Далее следует реакция удаления углерода, выделившегося при превращении карбонитрида в полуторный нитрид:

$$2yH_2 + yC \rightarrow yCH_4\uparrow$$
. (4)

И в конце процесса происходит следующее превращение:

$$UPuN_{1.5} \rightarrow UPuN + 1/4N_2\uparrow. \tag{5}$$

Реакции (1), (3) протекают в атмосфере азота при температуре не менее 1000 °C, реакции (2), (4) — в атмосфере водорода при температуре до 1200 °C, реакция (5) — в атмосфере гелия при температуре до 1500 °C.

Технологическая схема получения СНУП-топлива, основанная на данном методе, представлена на рис. 1 [3].

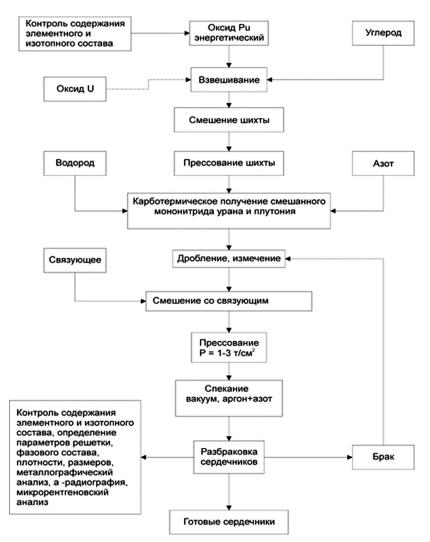


Рис. 1. Схема получения СНУП-топлива карботермическим восстановлением

В 2012 г. на площадке АО «СХК» создан комплекс экспериментальных установок (КЭУ1) — уникальная площадка для опытно-промышленного производства компонентов топлива, от топливной таблетки до тепловыделяющей сборки (ТВС), для быстрых и тепловых реакторов как российского, так и иностранного дизайнов.

КЭУ1 – действующее экспериментальное производство топлива, ТВЭЛ и ТВС со СНУПтопливом. Данное производство необходимо для обоснования его работоспособности и лицензирования.

На первом этапе для производства СНУП-топлива на КЭУ1 применялась технология ФГУП «НИИ НПО «ЛУЧ», которая заключалась в получении смешанного полуторного нитрида урана и плутония из исходных оксидов. Полученный порошок полуторного нитрида направлялся на стадию прессования таблеток, после чего таблетки спекались с обязательной стадией восстановления полуторного нитрида до мононитрида. В данной технологии в качестве связующего использовался тетрахлорид углерода, вследствие чего в составе спеченных таблеток присутствовало избыточное количество хлора, превышающее регламентированное.

По этой причине пришлось осуществить переход на технологию АО «ВНИИНМ» в конце 2012 г. В 2013 г. произошло дооснащение и модернизация КЭУ (установка четырех боксовукрытий, дополнительных печей синтеза, печи спекания и монтаж автоматизированного пресса), создание установки изготовления ТВС и, таким образом, увеличение производительности КЭУ.

В 2013 г. на КЭУ внедрена лабораторная технология получения СНУП-топлива методом карботермического синтеза. В результате внедрения и совершенствования данной технологии оптимизированы режимы получения исходных оксидов урана и плутония, процессы карботермического синтеза и спекания, а также оформлен технологический процесс на АО «СХК».

Первые этапы отработки технологии ВНИИНМ выявили ряд проблем:

- невозможность прямого переноса технологии АО «ВНИИНМ» в условия КЭУ;
- низкая, плохо управляемая прессуемость как исходных диоксидов, так и синтезированных нитридов;
- загрязнение исходных материалов конструктивными примесями на стадиях смешения и измельчения;
- отсутствие проверенных материалов для изготовления технологической оснастки;
- отсутствие повторяемости результатов процессов;
- низкая производительность установки.

Для решения данных проблем проведены следующие мероприятия:

- отработка режимов измельчения материалов;
- отработка и оптимизация режимов КТС и спекания;
- разработка и адаптация технологической оснастки;
- разработка и оптимизация конструкции пресс-инструмента;
- разработка технологии переработки несоответствующей продукции, доведение до кондиционных параметров;
- модернизация технологического оборудования;

В ходе работ на КЭУ выполнены следующие работы:

- впервые в мире изготовлены полномасштабные ТВС на основе СНУП-композиции;
- всего загружено в БН-600 18 ТВС (более 1000 ТВЭЛ различной конструкции с разными оболочками), успешно завершено облучение и послереакторные испытания 10-ти ТВС;
- подготовлены данные для верификации технологической модели процессов изготовления СНУП-топлива;
- на опытных образцах оборудования проведена отработка комплексного технологического процесса с экспериментальным масштабированием технологии изготовления СНУП-топлива;
- отработан алгоритм автоматической разбраковки таблеток и системы обеспечения и контроля параметров внутрибоксовой атмосферы;
- протестированы конструкционные материалы печей синтеза и спекания нитридного топлива.

На площадке опытно-демонстрационного энергетического комплекса (ОДЭК) планируется изготавливать таблетки СНУП-топлива, ТВЭЛ и ТВС с соблюдением следующих принципов:

- применение только «сухих» технологий;
- обеспечение высокой чистоты атмосферы, контактирующей с топливными материалами (постоянный контроль содержания влаги и кислорода);
- применение только автоматизированных процессов при обеспечении максимально возможного доступа к оборудованию для ручной настройки;
- переход к рефабрикации, т.е. в замкнутый ядерный топливный цикл (ЗЯТЦ), без изменения состава оборудования.

В составе модуля фабрикации-рефабрикации ОДЭК предусмотрена линия карботермического синтеза и изготовления таблеток СНУП-топлива.

На модуле фабрикации-рефабрикации ОДЭК будет использоваться представленная на рис. 2, схема получения СНУП-топлива.

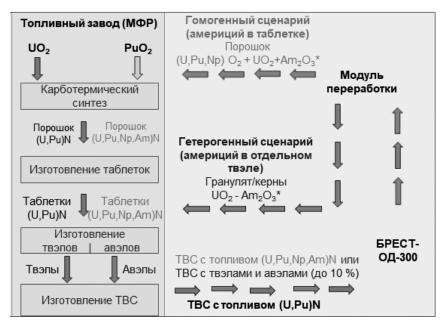


Рис. 2. Схема получения и использования СНУП-топлива на площадке ОДЭК

Рассмотрим подробнее процесс карботермического синтеза на модуле фабрикациирефабрикации. Нитрид урана и плутония синтезируют по карботермической технологии восстановления металлов из оксидов с одновременным нитрированием [4].

В соответствии с [11], на первом этапе порошки UO₂ и PuO₂ смешивают, добавляют углерод и стеарат цинка. Из полученной шихты прессуют шашки диаметром от 18 до 20 мм, высотой от 3 до 5 мм и массой от 7 до 9 г. Содержание UO₂ и PuO₂ составляет 85 и 15% соответственно. Полученные шашки направляют в печь, где происходит синтез. Карботермический синтез осуществляется сначала в азотной атмосфере, затем в атмосфере азота и водорода. Согласно данным, указанным в работе [12], для исключения повышенного содержания углерода в синтезированном нитриде урана и плутония, в газовую среду вводят водород, который, взаимодействуя с углеродом, образует метан. Таким образом, в результате синтеза образуюся нитрид урана и плутония, а также газы диоксид и монооксид углерода и метан, которые постоянно удаляют из зоны протекания реакции. Нитрид урана и плутония охлаждают в атмосфере аргона в целях предотвращения образования высших нитридов урана.

Основными элементами установки являются шесть высокотемпературных садочных печей синтеза горизонтального типа, входной/выходной бокс, два шлюзовых бокса (входной и выходной), шесть камер охлаждения, транспортно-технологическая система перемещения лодочек с шашками, включающая каналы загрузки и выгрузки, шесть установок газоочистки, системы подачи газов, воды для охлаждения печей, а также система управления и контроля.

Ядерная и радиационная безопасность при эксплуатации обеспечивается, в первую очередь, конструкцией установки и ее составных частей, а также ограничением массы делящихся изотопов

урана и плутония. Герметичное исполнение оборудования исключает выход радиоактивных продуктов за пределы установки. Для предотвращения аварийных ситуаций и поломки установки при отказе ее элементов и систем предусмотрены системы блокировок и оповещения об отказах.

Заключение

На ранних стадиях НИР ученые применяли способ гидрирования-нитрирования металлов урана и плутония, но после детального анализа был поставлен акцент на карботермическое восстановление из исходных оксидов урана и плутония. Первые анализы нитридов урана и плутония, полученных данным способом, показали, что карботермический синтез является одним из возможных способов получения нитридного топлива в промышленном масштабе и имеет преимущество в использовании в качестве исходных материалов оксидов, являющихся продуктом действующих предприятий радиохимической переработки облученного топлива.

В настоящее время также ведутся научно-исследовательские работы по созданию альтернативных способов, исключающих введение карбидизирующих реагентов, но пока они находятся на стадии лабораторной реализации. В данной работе показан опыт использования на АО «СХК» метода карботермического синтеза для получения СНУПТ в действующем опытном производстве.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Адамов Е.О., Орлов В.В., Рачков В.И. и др. // Известия РАН. Энергетика. 2015. № 1. С. 13—39.
- 2. Троянов В.М., Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Скупов М.В. // Атомная энергия. 2014. Т. 117. Вып. 2. С. 69—75.
- 3. Копырин А.А., Карелин А.И., Карелин В.А. Технология производства и радиохимической переработки ядерного топлива: учеб. пособие для вузов. М.: ЗАО «Издательство Атомэнергоиздат», 2006. 576 с.
- 4. Алексеев С.В., Зайцев В.А. Нитридное топливо для ядерной энергетики. М.: Техносфера, 2013. 240 с.
- 5. Постановление Правительства РФ от 3.02.2010 № 50 «О федеральной целевой программе «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010–2015 годов и на перспективу до 2020 года».
- 6. Поплавский В.М., Забудько Л.М., Шкабура Й.А. и др. // Атомная энергия. 2010. Т. 108. — Вып. 4. — С. 212—217.
- 7. Рогозкин Б.Д., Степеннова Н.М., Прошкин А.А. // Атомная энергия. 2003. Т. 95. Вып. 3. С. 208—211.
- 8. Елисеев В.А., Забудько Л.М., Малышева И.В., Матвеев В.И. // Атомная энергия. 2013. Т. 114. Вып. 5. С. 266—271.
- 9. Ватулин А.В., Рогозкин Б.Д., Сила-Новицкий А.Г. // Вопросы атомной науки и техники. Сер. Обеспечение безопасности АЭС. 2004. Вып. 4. С. 161–170.
- 10. Грачев А.Ф., Забудько Л.М., Глушенков А.Е. и др. // Атомная энергия. 2017. Т. 122. Вып. 3. С. 156—167.
- 11. Смирнов В.П., Павлов С.В., Иванов Д.В. и др. // Атомная энергия. 2018. Т. 125. Вып. 5. С. 284—287.
- 12. Bordell P. and Warin D. // J. Nucl. Mater. -1992. -V. 188. -P. 36-42.

Поступила в редакцию 20.10.2020.

¹ АО «Сибирский химический комбинат», г. Северск, Россия

² Северский технологический институт Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ», г. Северск, Россия

Федоров Максим Сергеевич, технолог участка ОДЭК АО «СХК», аспирант СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: maxwin1@vandex.ru:

Зозуля Дмитрий Валерьевич, директор ОДЭК AO «СХК», e-mail: DVZozulya@rosatom.ru;

Жиганов Александр Николаевич, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: anzhiganov@mephi.ru;

Софронов Владимир Леонидович, д.т.н., профессор СТИ НИЯУ «МИФИ», e-mail: vlsofronov@mephi.ru.

M.S. FEDOROV^{1,2}, D.V. ZOZULYA¹, A.N. ZHIGANOV², V.L. SOFRONOV²

APPLICATION OF THE TECHNOLOGY OF CARBOTHERMAL SYNTHESIS IN THE PRODUCTION OF MIXED URANIUM AND PLUTONIUM NITRIDE

An overview and a brief analysis of the application of the technology of carbothermal synthesis in the production of mixed uranium and plutonium nitride is presented. Emphasizes on the application of this method in the implementation of the «Breakthrough» project. The paper presents the experience of implementing this technology at the site of the «Siberian Chemical Plant», the proposed technological scheme for producing mixed uranium and plutonium nitride at the fabrication-refabrication module of the experimental demonstration power complex.

Keywords: carbothermal synthesis, uranium, plutonium, nitride fuel, experimental demonstration energy complex.

Fedorov Maxim Sergeevich, Area Technologist PDEC Siberian Chemical Plant, Graduate Student STI NRNU «MEPHI», e-mail: maxwin1@yandex.ru;

Zozulya Dmitry Valerevich, Director of PDEC Siberian Chemical Plant, e-mail: DVZozulya@rosatom.ru;

Zhiganov Alexander Nikolaevich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: anzhiganov@mephi.ru;

Sofronov Vladimir Leonidovich, Doctor of Technical Sciences, Professor STI NRNU «MEPHI», e-mail: vlsofronov@mephi.ru.

¹ Siberian Chemical Plant, Seversk, Russia

² Seversk Technological Institute National Research Nuclear University «MEPHI», Seversk, Russia