

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ ПРОКАЛКИ ПОЛИУРАНАТА АММОНИЯ НА СТРУКТУРУ ПОРОШКОВ ДИОКСИДА УРАНА И ИХ АКТИВНОСТЬ К СПЕКАНИЮ

Е.О. Тлеуенов

Научный руководитель: доцент, к. ф-м. н. А.Г. Каренгин., к. ф-м. н. Ю.Г. Русин

Национально исследовательский Томский политехнический университет,

Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050

Email: erick_090@mail.ru

INVESTIGATION OF POLIURANATA AMMONIUM TEMPERATURE CALCINATION INFLUENCE ON STRUCTURE OF URANIUM DIOXIDE POWDER AND SINTERED TO THEIR ACTIVITY

E.O. Tleukenov

Scientific Supervisor: Prof., Dr. A.G. Karengin., Dr. U.G. Rusin

Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050

E-mail: erick_090@mail.ru

We investigated the physico-chemical and technological properties of powders of natural uranium obtained by ADU technology. To assess the effect of temperature calcination poliuranata ammonium (CPA) on the activity of UO_2 powders, a series of experiments had done. In connection with the chosen characteristics of the modes were calculated characteristics of uranium dioxide powders, the microstructure of uranium UO_2 tablets also was studied. Key words: UO_2 - dioxide of uranium, CPA- calcination poliuranata ammonium.

Введение Многолетний мировой опыт изготовления таблетированного топлива для атомных станций выработал основные технологические приёмы получения порошка диоксида урана, подготовки его к прессованию таблеток, изготовления самих таблеток [1]. Каждый из этих этапов содержит несколько операций, которые также стали типовыми. Они направлены на формирование основных качеств порошка, которые делают его материалом керамического сорта – спекаемость, текучесть и прессуемость. Закладываются эти свойства, в основном, на стадии химического передела [2–3] и продолжают формироваться, при их физической обработке. Цель данной работы состоит в том, чтобы проследить изменение фазового состава в зависимости от условий получения и примесей находящихся в диоксиде урана. Порошки диоксида урана, полученные через осаждение полиуранатов аммония (ADU-технология) [3], обычно стабилизируют от окисления на воздухе в среде с пониженным содержанием кислорода, измельчают в мельнице или дробилке для усреднения частиц порошка [4], уплотняют и гранулируют для достижения необходимого для прессования насыпного веса и текучести.

Экспериментальная часть Для оценки влияния температуры прокали полиураната аммония (ПУА) на активность порошков UO_2 была проведена серия опытов. Цеховую пасту ПУА в лабораторных условиях прокаляли при температурах 400, 500, 600 и 7000С. Полученные порошки U_3O_8 были восстановлены на лабораторной установке в течение часа при температуре 6000С.

Из порошков диоксида урана были изготовлены прессовки без добавления связующего. Плотность прессовок составляла 5,18-5,26 г/см³. Тест на спекаемость проводили в колпаковой печи при температуре 1750 °С с выдержкой 4 часа.

Таблица 1. Результаты теста на спекаемость порошков UO_2 из порошков U_3O_8 с различной температурой прокали, восстановленных при $650^\circ C$

Температура прокали U_3O_8 , $^\circ C$	$S_{СБЭТ}$ U_3O_8 , m^2/g	$S_{СБЭТ}$ UO_2 , m^2/g	Плотность таблеток, g/cm^3					
			1	2	3	4	5	Ср. знач.
500	10,1	5,2	10,59	10,58	10,58	10,58	10,57	10,58
600	6,75	3,6	10,46	10,46	10,45	10,49	10,46	10,46
700	3,05	1,9	10,26	10,25	10,27	10,26	10,27	10,26

Была исследована микроструктура таблеток, изготовленных из восстановленных в лабораторных условиях порошков (рис.1).

Таблица 2. Сравнительная характеристика параметров микроструктуры таблеток из порошков, спеченных при различных температурах

№	$S_{БЭТ}$, m^2/g	Спекание при $1400^\circ C$,		Спекание при $1600^\circ C$,		Спекание при $1750^\circ C$	
		Ср. Размер зерна, μm	Термическая стабильность %	Ср. Размер зерна, μm	Доспекаемость, %	Ср. Размер зерна, μm	Доспекаемость, %
1	7,4	8	0,54	18	0,21	25	0,11
2	5,5	5	1,46	11	0,71	16	0,37
3	3,5	4	1,56	5	0,67	14	0,46
4	Реперный вариант	4	1,23	6	0,58	13	0,34

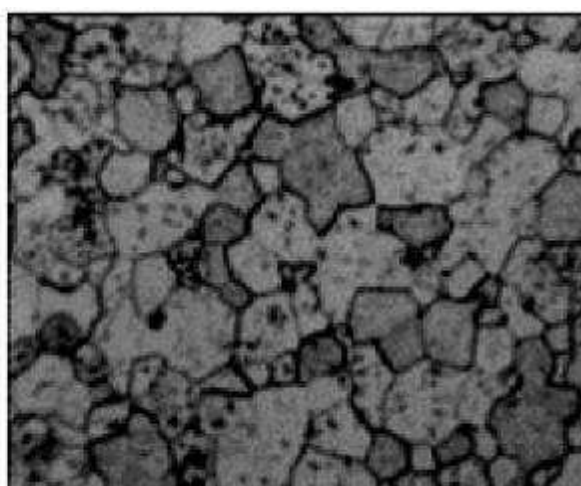
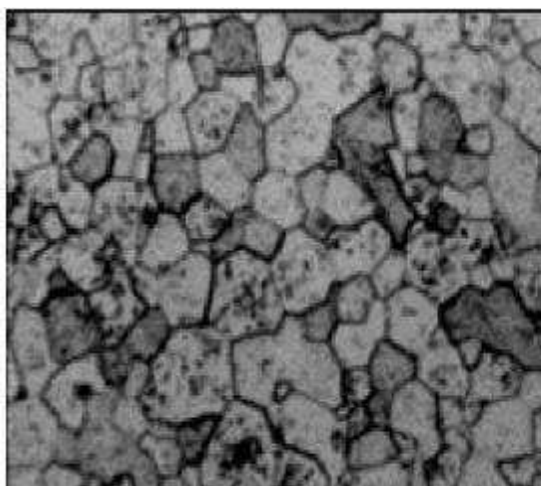


Рис.1. Зёрненная структура таблеток из порошков UO_2 , полученных при температуре прокали ПУА – $500^\circ C$, температура восстановления: а – $500^\circ C$; б – $600^\circ C$

Активность порошка UO_2 обуславливает более высокую скорость миграции границ зерен. Поры, оторвавшись от границ зерен, остаются внутри объема зерна и практически не залечиваются, а коагулируют и, соответственно, уже мало влияют на доспекаемость таблеток.

Таким образом, спекание в колпаковой печи при температурах в диапазоне $1400-1750^\circ C$ таблеток из порошков, полученных в лабораторных условиях со стабилизацией отношения О/У методом контролируемого окисления, показало повышенную активность порошка UO_2 с высокой удельной поверхностью ($7,4 m^2/g$). Требуемый уровень плотности и доспекаемости таблеток достигается уже при температуре $1600^\circ C$ даже при плотности прессовок $5,3 g/cm^3$.

Выводы Установлено, что факторы, такие как насыпная плотность, текучесть, удельная поверхность

порошка диоксида урана влияют на качество спечённых таблеток.

В лабораторных условиях, благодаря стадии пассивации, возможно получать порошки UO_2 с величиной СБЭТ порядка 10 г/см^3 .

Техопробование показало высокий уровень плотности спеченных таблеток, низкую пористость, достаточно большой размер зерна в таблетках, спеченных из активных порошков UO_2 .

Плотность спеченных таблеток зависит от таких характеристик исходного порошка UO_2 , как полная удельная поверхность, отношение O/U , (прямая зависимость) и насыпная плотность (обратная зависимость).

Исходя из значений плотности спеченных таблеток, определены оптимальные режимы получения активного порошка UO_2 в лабораторных условиях.

Данные техопробования позволяют предположить возможность снижения затрат на изготовление топливных таблеток путем увеличения производительности печей TER либо снижения температуры при спекании активных стабилизированных порошков UO_2

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Radford K.C., Pope J.M. Controlled porosity reactor fuel // Journal of Nucl. Mat. – 1977. – V. 64. – P. 289–299.
2. The influence of precipitation conditions on the properties of ammonium diuranate and uranium dioxide powders /Janov J., Alfredson P.G., Vilkaitis.-M.:V.K.. AAEC/E-220 (AAECE220), May 1971. – 40 p.
3. Технология диоксида урана для керамического ядерного топлива/ Жиганов А.Н., Гузеев В.В., Андреев Г.Г.– М.: Томск: STT, 2002. – 326 с.
4. Proceedings of the workshop on manufacturing technology and process for reactor fuels. Research/Young-Woo Lee; Sang-Ho Na; Si-Hyung Kim; Myung-Seung Yang; Dong-Seong Sohn.-M.: Tokyo (Japan), Feb 1996. – 214 p.