

Химическая технология редких элементов

КАТАЛИТИЧЕСКОЕ ВОССТАНОВЛЕНИЕ УРАНА В ТЕХНОЛОГИИ ПРОИЗВОДСТВА СМЕШАННЫХ ОКСИДОВ УРАНА И ПЛУТОНИЯ

Г.А. Апальков¹, А.Ю. Жабин, С.И. Смирнов, А.С. Дьяченко, А.И. Коробейников
Научный руководитель – д.т.н., профессор А.Н. Дьяченко²

¹Горно-химический комбинат

662970, Россия, г. Железногорск, ул. Ленина 53, atomlink@mcc.krasnoyarsk.su

²Национальный исследовательский Томский политехнический университет
634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина 30

Концепция замыкания ядерного топливного цикла основана на повторном использовании регенерированных из отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) урана и плутония для изготовления смешанного оксидного топлива (МОКС-топливо) реакторов на быстрых нейтронах. Используемый в производстве МОКС-топлива двухстадийный MIMAS-процесс (MICronized MASTer blend – микронная мастер-смесь) предполагает отдельное получение порошков UO_2 и PuO_2 , которые далее измельчают до микрометрических размеров, гомогенизируют смесь и таблетуют в инертной атмосфере. Отсутствие гомогенности полученных смесей является существенным недостатком, обусловленным сложностью процессов измельчения и смешения, которые не всегда обеспечивают необходимую однородность порошков перед таблетированием.

Высокая степень однородности распределения компонентов может быть достигнута при совместном выделении урана и плутония из азотнокислых растворов и последующей термической обработке полученных смесей. Разработанный способ получения смешанных оксидов урана и плутония заключается в одновременном оксалатном осаждении из раствора урана и плутония с последующей прокалкой в восстановительной атмосфере с получением требуемой степени гомогенизации смешанных оксидов [1]. Совместное оксалатное осаждение урана и плутония является, по сути, изоморфным, что способствует образованию твердых растворов, обладает достаточной гибкостью и предоставляет

возможность изменения морфологии частиц для оптимизации свойств порошков. Однако указанные преимущества получения смешанных оксидов с использованием оксалатного осаждения могут быть реализованы только при количественном переведении урана в четырехвалентную форму и ее стабилизации при осаждении.

Технологически пригодным способом переведения урана в четырехвалентное состояние является процесс восстановления его шестивалентной формы в присутствии твердофазных катализаторов, в качестве которых используют платиновые катализаторы с носителями в виде анионитов, силикагелей, углей, оксидов металлов и др. [2]. Широкое использование платиновых катализаторов в радиохимическом производстве ограничено высокой стоимостью и необратимыми потерями платины в ходе эксплуатации катализатора. Актуальной задачей при этом является поиск альтернативных каталитически активных материалов для снижения расхода платины или ее замены.

В результате экспериментальной апробации разработана методика синтеза биметаллического платино-циркониевого катализатора путем нанесения на инертный носитель (Al_2O_3) поверхностно интегрированного тонкодисперсного слоя микрокристаллических агломератов циркония с последовательным нанесением на развитую металлизированную поверхность ультратонкого слоя платины [3]. Синергетический каталитический эффект влияния циркония (как активирующего промотора), отмеченный в ходе

лабораторных исследований по получению азотнокислых растворов четырехвалентного урана, позволил существенно сократить количество платины. Характеристики катализатора (фракция до 1 мм): содержание платины – 0,08–0,2 % масс., циркония – до 0,5 % масс., удельная поверхность – до 20 м²/г.

Эксперименты по каталитическому восстановлению урана в азотнокислой среде, оптимизацию температуры процесса, содержания гидразин-нитрата и азотной кислоты проводили в динамическом режиме в разработанном термостатируемом аппарате колонного типа

непрерывного действия [4]. Эффективное восстановление урана (98,6–99,5%) отмечено при температуре 65 °С и скорости потока 3,6 к.о./ч. при [HNO₃]=0,8–1 моль/л и [N₂H₅NO₃]=0,5–0,65 моль/л.

Предложенный платино-циркониевый катализатор в 10–100 раз дешевле традиционно используемых платиновых катализаторов с сохранением каталитической активности и срока эксплуатации и является перспективным для использования в разработанной технологии получения смешанных оксидов урана и плутония.

Список литературы

1. Жабин А.Ю., Апальков Г.А., Дьяченко А.С., Коробейников А.И., Смирнов С.И. Заявка на изобретение № 2015157473 от 31.12.2015.
2. Ананьев А.В. Дис... докт. хим. наук, 2005.– 391с.
3. Жабин А.Ю., Апальков Г.А., Смирнов С.И. Заявка на изобретение № 2015118092 от 14.05.2015.
4. Патент на полезную модель № 158504 от 10.01.2016.

ИССЛЕДОВАНИЕ ПОВЕДЕНИЯ ФТОРИД-СЕЛЕКТИВНОГО ЭЛЕКТРОДА ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ МИКРОКОНЦЕНТРАЦИЙ ФТОРИД-ИОНОВ

Я.Е. Баженова, А.В. Дубровин

Научный руководитель – д.х.н., профессор В.А. Карелин

Национальный исследовательский Томский политехнический университет
634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина 30, janika12.03@mail.ru

Безопасность и долговечность работы технологического оборудования АЭС зависит от содержания F⁻-ионов в воде теплоносителя АЭС. Концентрация этих ионов в технологических водах не должна превышать 4–6 мкг/дм³. Для их определения необходим экспрессный, неразрушающий метод контроля [1].

В настоящей работе для решения указанной задачи выбран потенциометрический метод. В качестве ионоселективного электрода применен выпускаемый промышленностью фторидселективный электрод ИСЭ-F-01. Для обеспечения его работы в диапазоне микроконцентраций исследованы добавки различных фоновых электролитов – соляной, серной, азотной кислот, а также уксусной и муравьиной кислот и их солей [2].

Для обеспечения удовлетворительных метрологических характеристик ИСЭ-F-01 в диапазоне концентраций от 10⁻⁷ до 10⁻⁴ М F⁻-ионов в глубокообессоленных водах водоподготовительных установок (ВПУ) в качестве фонового

электролита необходимо использовать уксусную кислоту с концентрацией от 0,001 до 0,1 М.

Исследовано влияние различных мешающих ионов на основные метрологические характеристики фторидселективного электрода ИСЭ-F-01 [3]. Установлены предельно допустимые концентрации мешающих ионов, не оказывающие мешающего воздействия на устойчивость и воспроизводимость показаний измерительного электрода.

При исследовании влияния катионов Fe³⁺ на метрологические характеристики ИСЭ-F-01 показано, что концентрация катионов железа, равная 70 мкг/дм³, существенно влияет на фторидную функцию электрода. Это связано с образованием комплексных ионов катионов железа с фторид-ионами. При добавлении 0,01 N раствора Трилона Б в калибровочные растворы показатели работы электрода улучшаются. Поэтому для определения концентрации фторид-ионов в технологических водах, содержащих до 70 мкг/дм³ катионов Fe³⁺, в измеряемых растворах