

# ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЕ ВОЗМОЖНОСТИ СОЗДАНИЯ ТОПЛИВНЫХ КОМПОЗИЦИЙ, СОДЕРЖАЩИХ ТОРИЙ\*

**Г.Н.Казанцев, И.С.Курина, И.Я.Овчинников, В.В. Попов, В.Н.Сугоняев**

*ГНЦ РФ-Физико-энергетический институт им. А.И. Лейпунского, г. Обнинск*



Имеющийся в ГНЦ РФ-ФЭИ технологический опыт разработки различных топливных композиций позволил вести работы по созданию торийсодержащих топливных композиций в трех направлениях:

- создание металлического торийсодержащего топлива;
- создание керамического торийсодержащего топлива;
- создание керметного торийсодержащего топлива.

## МЕТОД ПОЛУЧЕНИЯ ТОРИЙСОДЕРЖАЩЕГО МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ТОПЛИВА

При изготовлении сплава Th-U-Zr используется метод дуговой плавки с нерасходуемым электродом. В качестве исходных материалов используются металлический U и Th, а также иодидный цирконий. Изготовление слитков проводится в дуговой печи типа МИФИ с использованием медного водоохлаждаемого тигля. В качестве нерасходуемого электрода используется вольфрам. Плавление проводится в среде аргона. Для осушки аргона и его очистки от кислорода плавки в дуговой печи используется циркониевый геттер.

Между водоохлаждаемым электродом с вольфрамовым наконечником и подвергаемым плавке материалом зажигалась дуга. Металл (Th, U, Zr) служит положительным электродом и плавится за счет тепла, выделяемого дугой. После того как расплав затвердевает и остывает, слиток переворачивается и переплавляется еще раз. Такие операции с переплавом слитков проводятся несколько раз, что необходимо для получения достаточно однородного сплава (Th, U, Zr).

Равномерность распределения тория, урана и циркония по объему слитка контролируется микрорентгеноспектральным анализом.

После изготовления сплава в дуговой печи слитки имеют форму, плохо пригодную для механической обработки. Изготовление топливных блочков из слитков осуществляется методом вакуумного переплава. Вакуумный переплав слитков проводится в печи электросопротивления СШВЛ с использованием вольфрамовых нагревателей. В качестве контейнерного материала для вакуумного переплава слитков используется сборка из двух кварцевых ампул. Верхняя ампула имеет от-

© Г.Н.Казанцев, И.С.Курина, И.Я.Овчинников, В.В. Попов, В.Н.Сугоняев, 1999

\* Доклад с российско-индийского семинара по ториевому топливному циклу (Обнинск, 17-19 ноября 1998 г.)

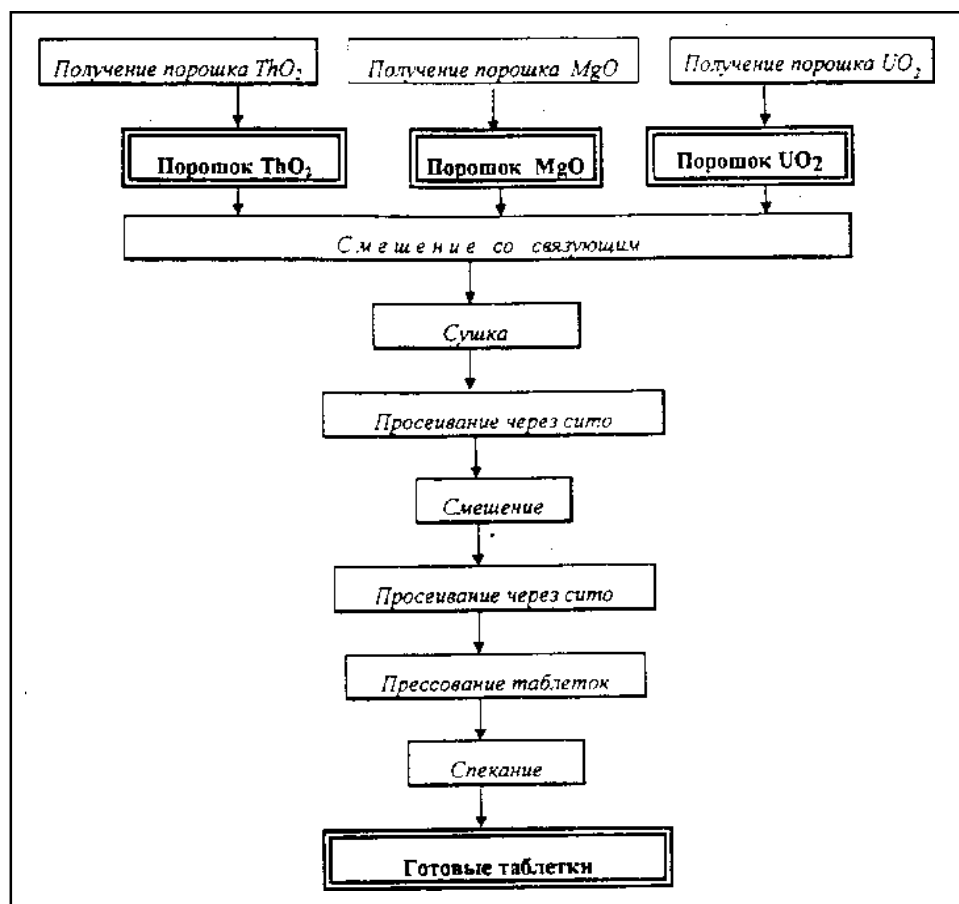


Рис. 2.1. Технологическая схема получения таблеток композиции  $UO_2 + ThO_2 + MgO$  способом механического смешения порошков

верстие в дне. Плавка проводится в вакууме. Температура на внешней поверхности кварцевого тигля контролируется с помощью W-Re термпары.

Охлаждение сплава проводится вместе с печью.

При оптимизированном режиме переплава толщина слоя взаимодействия между сплавом и кварцем не превышает 0,25-0,3 мм.

После переплава нижняя кварцевая ампула разрушается механическим способом, а полученные цилиндрические стержни обрабатываются механическим способом.

## ПОЛУЧЕНИЕ КЕРАМИЧЕСКИХ ТОПЛИВНЫХ КОМПОЗИЦИЙ НА ОСНОВЕ $UO_2$ И $ThO_2$

В ГНЦ РФ-ФЗИ изготовление керамических топливных композиций на основе диоксидов урана и тория осуществляется двумя способами: способом механического смешения порошков оксидов и способом совместного осаждения компонентов из растворов с последующими операциями термической обработки порошков, прессования и спекания изделий (таблеток, втулок). При этом в процессе изготовления изделий в их состав вводятся дополнительные компоненты с целью достижения заданных свойств (улучшения технологичности порошков, повышения теплопроводности, механической прочности изделий и т.д.).

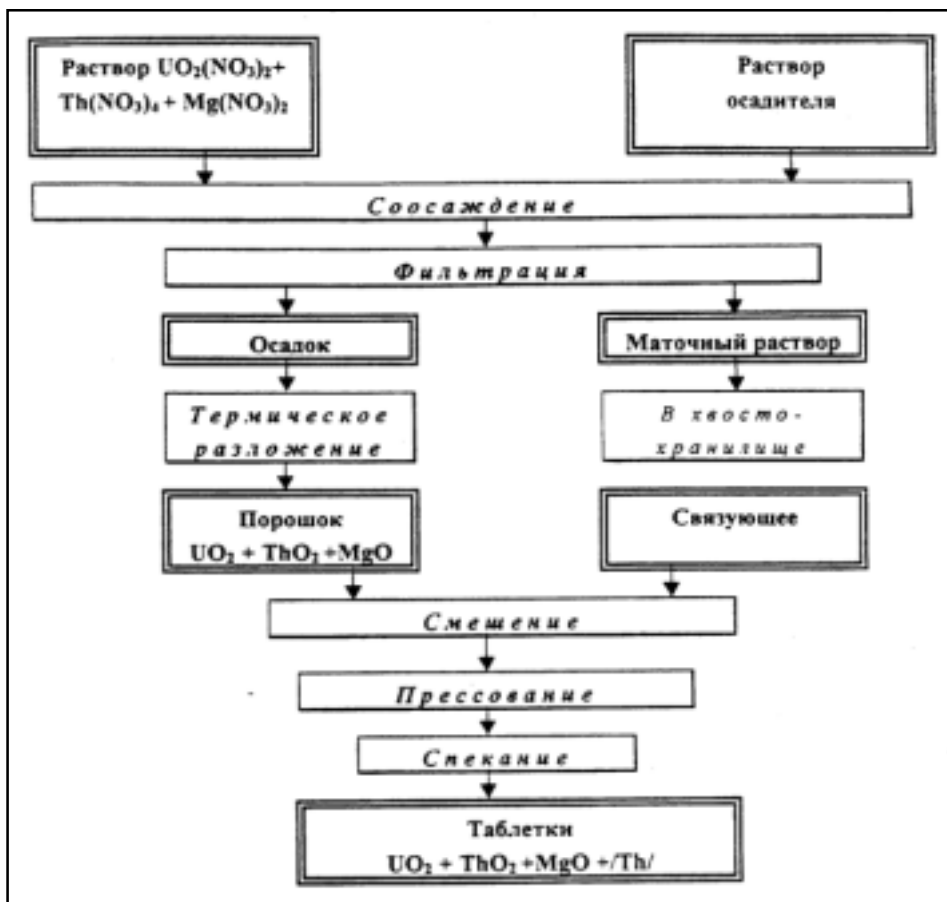


Рис. 2.2. Технологическая схема получения таблеток композиции  $UO_2 + ThO_2 + MgO + Th/$  соосаждением гидроксидов магния, урана и тория из раствора

### Получение изделий способом механического смешения порошков

На рис.2.1 представлена технологическая схема изготовления изделий композиций  $UO_2 + ThO_2 + MgO$  (CaO и др.).

Схема включает в себя основные операции:

- изготовление исходных порошков;
- смешение порошков с введением связующего вещества;
- прессование изделий;
- спекание изделий.

Для приготовления смеси используются порошки с оптимальными свойствами (полной удельной поверхностью, гранулометрическим, химическим, фазовым составами и др.). Режимы прессования и спекания подбираются такими, чтобы получить изделия с оптимальными плотностью (пористостью), механической прочностью и т.д.

### Получение изделий способом совместного осаждения компонентов из растворов

Разработан способ получения многокомпонентных топливных композиций по технологической схеме, представленной на рис.2.2. Аппаратурное оформление (рис.2.3) процесса включает в себя:

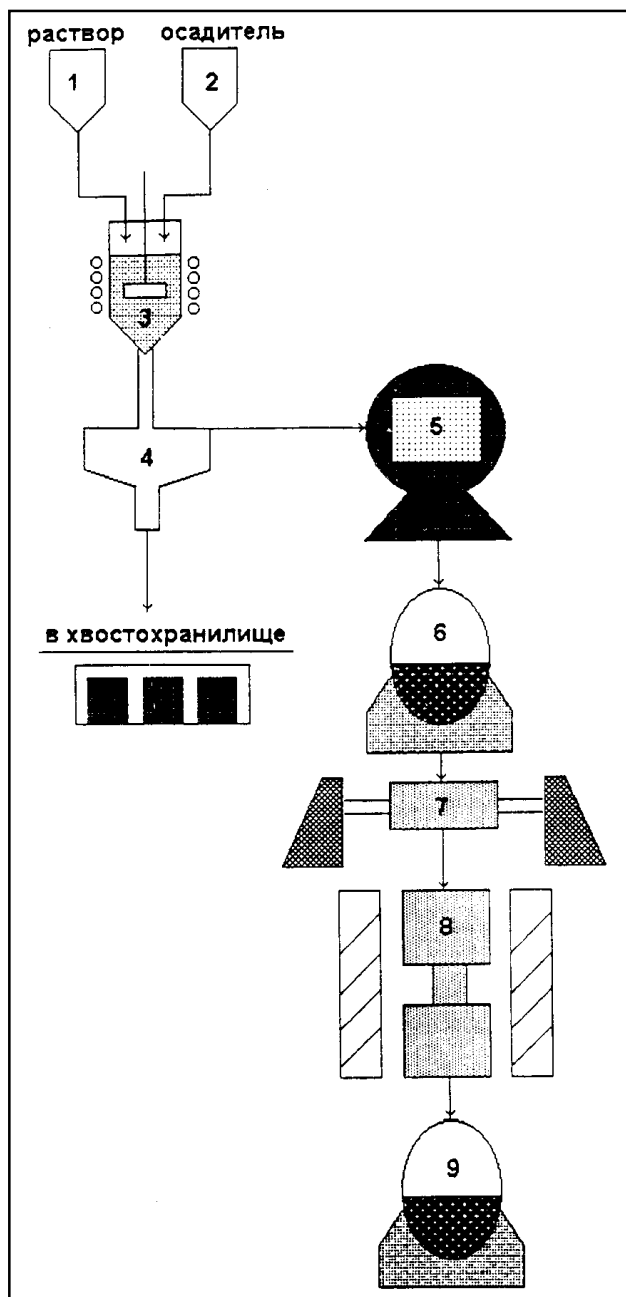


Рис. 2.3. Аппаратурное оформление процесса получения торийсодержащих композиций способом соосаждения из раствора

такой композиции было разработать технологию получения топлива на основе оксида плутония в торийсодержащей матрице для утилизации Pu оружейного происхождения. Диоксид урана использовался в качестве имитатора  $PuO_2$ .

Композиция получена соосаждением компонентов U, Th, Mg из нитратного раствора аммиаком с последующими операциями прокаливания осадка, восстановления водородом, прессования и спекания таблеток.

Спеченные при температуре  $1500^{\circ}C$  топливные таблетки имели плотность  $\sim 90\%$

- емкость для подачи раствора, содержащего уран, торий и другие компоненты (1);
- емкость для подачи осадителя (2);
- аппарат для соосаждения (3);
- оборудование для фильтрации пульпы (4);
- печь для термической обработки осадка на воздухе (5);
- печь для термической обработки осадка в восстановительной среде (6);
- смеситель (7);
- пресс;
- печь для спекания таблеток (9).

Как правило, исходные компоненты растворяют в азотно-кислом растворе.

В качестве осадителя используется водный раствор аммиака или оксалат аммония. При создании топливной композиции значительное внимание уделяется процессам получения порошков, свойства которых оказывают определяющее влияние на качество спеченных изделий.

Для различных схем получения таблеток (втулок) различных топливных композиций на основе оксидов, оптимальные свойства промежуточных оксидов индивидуальны.

Способом соосаждения была создана композиция  $UO_2 + Th + ThO_2$ .

Композиция  $UO_2 + Th + ThO_2$  была получена с участием оксида магния. Целью создания

от теоретической, равномерную микроструктуру (рис.2.4). Рентгеноструктурный анализ выявил в композиции фазы:  $UO_2$ ,  $ThO_2$ , Th и фазу типа перовскита ( $MgThO_3$ ). Металлический торий равномерно распределен в объеме композиции в виде мельчайших блестящих вкраплений. Материал топливных таблеток не взаимодействовал с водой и не растворялся в растворе азотной кислоты при температуре  $\sim 100^\circ C$ .

## МЕТОД ПОЛУЧЕНИЯ ТОРИЙСОДЕРЖАЩЕГО КЕРМЕТНОГО ТОПЛИВА

Керметное топливо представляет собой дисперсную систему металлической матрицы (Th-Zr) и частиц керамического топлива.

Металлическая матрица (Th-Zr) получается методом литья, описанным в п.1, с последующим диспергированием ее на частицы размером 50-200 мкм методом распыления вращающегося электрода, изготовленного из Th-Zr сплава.

Частицы керамического топлива ( $ThO_2-UO_2$ ) получают путем дробления таблеток из того же материала, изготовленных методом, описанным в п.2.

Шихта для изготовления керметного топливного сердечника готовится путем смешения частиц (Th-Zr) с частицами ( $ThO_2-UO_2$ ) в нужном соотношении после введения пластификатора. Процесс брикетирования сердечника производится на 80-тонном прессе. Брикеты просушиваются и отгазовываются в печи СВЧ. После отгазовки брикеты помещаются в циркониевый стакан и вместе со стаканом калибруются до необходимого размера через фильеру. Полученные таким образом керметные топливные стержни можно разрезать, дегазировать и использовать для изготовления твэла.

## ДИСПЕРСИОННЫЕ ТОПЛИВНЫЕ КОМПОЗИЦИИ НА ОСНОВЕ $ThO_2-UO_2$ С МАТРИЦЕЙ ИЗ РАСШИРЕННОГО ПИРОГРАФИТА

Расчетные исследования показали, что рассматриваемая композиция позволяет улучшить характеристики реактора за счет дополнительного твердого замедлителя и холодного топлива. Предполагается, что в твэлах с таким топливом отсутствует химическое взаимодействие и существенно уменьшается механическое взаимодействие топливной композиции и оболочки на переходных режимах работы реактора и при протекании аварий.

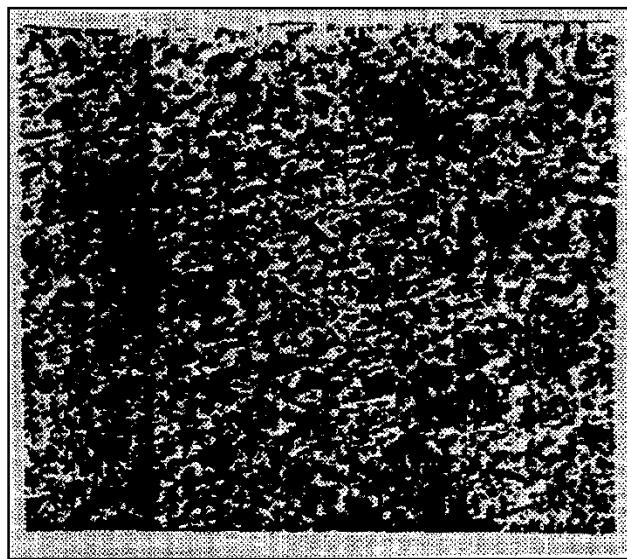


Рис. 2.4. Фотография микроструктуры образца композиции матричного материала Th+  $ThO_2$  +MgO (увеличение=200)

Материалы, входящие в состав топливной композиции существенно различаются по плотности, что затрудняет использование традиционных технологических схем, применяемых в порошковой металлургии. Для изготовления экспериментальных образцов используется способ послойного (порционного) заполнения полости прессформы компонентами топливной композиции и дальнейшего прессования.

Измеренный коэффициент теплопроводности рассматриваемой композиции (50% об.  $ThO_2-UO_2$  + 50% об. пирографит) при  $700^\circ C$  составил

7,8 Вт/м·град вдоль оси прессования образцов и 27,0 Вт/м·град – поперек оси прессования. Такое различие в величине коэффициента теплопроводности объясняется наличием текстуры матрицы из расширенного пирографита.

## **ИЗГОТОВЛЕНИЕ КОМПАКТНЫХ ИЗДЕЛИЙ ИЗ ДИОКСИДА УРАНА-233**

Учитывая тот факт, что в уране-233 неизбежно присутствует в качестве примеси U-232, желательно иметь технологию изготовления компактных изделий из диоксида, которая включала бы минимальное количество технологических операций и была бы менее продолжительной по времени по сравнению с традиционными технологиями порошковой металлургии.

В результате проделанной в этом направлении работы нам удалось:

- в качестве исходного продукта использовать окись-закись урана-233, из которой предварительно методом химического разделения удалялся торий-228 - первый дочерний продукт деления урана-232;

- существенно сократить технологический процесс по времени (на 30-40%) и по числу операций, а, следовательно, уменьшить количество используемого технологического оборудования;

- осуществить надежный контроль за дозиметрической обстановкой как в процессе проведения работ, так и после их окончания.

Готовые таблетки диаметром 8,95-9,0 мм и высотой 2,5-3,0 мм имели кислородный коэффициент  $(O/U) < 2,04$ , плотность  $\sim 10 \text{ г/см}^3$ , имели хорошую поверхность и не нуждались в механической обработке.

Технологические потери по урану составили около 1%.

Мощность экспозиционной дозы составляла:

- от двух таблеток массой 3,2 г на расстоянии 2 см – 0,9 мкР/с;
- от партии таблеток массой 29 г, помещенных в циркониевую трубу с толщиной стенки 0,5 мм, на расстоянии 2 см  $\sim 24 \text{ мкР/с}$ .

Поступила в редакцию 21.12.98.

## ABSTRACTS OF THE PAPERS

**УДК 621.039.516.4:621.039.59**

*New Solutions for Thorium-Uranium Fuel Reprocessing \ V.I.Volk, A.Yu.Vakhrushin, B.S.Zakharkin, S.L.Mamaev, V.S.Vlasov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 5 pages, 1 table, 3 illustrations. - References, 4 titles.*

The new technological scheme of reprocessing is proposed for closed Th-U fuel cycle with increased  $^{233}\text{U}$  breeding. This scheme is based upon the combination of crystallization and extraction operations and consist of steaming of solution obtained after fuel dissolution, and crystallization of thorium nitrate from the cooled remnant solution.

The volume of flow containing  $^{233}\text{U}$  and entering to extraction reprocessing, is reduced by 10-30 times. The extraction reprocessing is provided using extragents which do not form second organic phase with the thorium solvates. The reduction of volume of treated flows provides fast  $^{233}\text{U}$  regeneration and further fuel refabrication which will not be complicated by decay products of even uranium isotopes.

**УДК 621.039.544.35**

*Concept of Possible Involving of Thorium in Nuclear Power Industry \ P.N.Alekseev, E.S.Glushkov, A.G.Morozov, N.N.Ponomarev-Stepnoy, S.A.Subbotin, D.F.Tsurikov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 9 pages. - References, 6 titles.*

The contemporary nuclear industry is familiar with the closed uranium-plutonium cycle, which gives the grounds for development of future large-scale nuclear power engineering. Still there is no any forcible arguments to replace it by the closed thorium-uranium cycle. However there is the permanent interest to increase the raw material stockpiles of nuclear industry by supplementing with the thorium fuel.

The Russian Scientific Center "Kurchatov Institute" together with organizations of the Ministry of Nuclear Energy of Russian Federation provides the works related to thorium problem. These include the physical, material science and technological investigations as well as the study of optimal reactor arrangement and investigations of effective ways of thorium involving in nuclear power industry based on the complex technical and economical and radiological analysis.

**УДК 621.039.59:621.039.544.35**

*The Technological Possibilities of Fabrication Thorium-Containing Fuel Composition \ G.N.Kazantsev, I.S.Kurina, I.Ya.Ovchinnikov, V.V.Popov, V.N.Sugonyaev; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 5 pages, 4 illustrations.*

The technological experience of fabrication different fuel compositions, accumulated by the State Scientific Center "IPPE", allows to provide the works on thorium-containing fuel compositions in three ways:

- fabrication of metal thorium-containing fuel;
- fabrication of ceramic thorium-containing fuel;
- fabrication of cermet thorium-containing fuel.

**УДК 621.039.544.35:621.039.526**

*Ways and Possibilities of Thorium Cycle Application for Light Water and Fast Reactors \ V.M.Dekusar, E.V.Dolgov, V.G.Ilunin, A.G.Kalashnikov, V.A.Pivovarov, M.F.Troyanov, Z.N.Chizhikova, V.N.Sharapov; Editorial board of journal "Izvestia visshikh uchebnikh zavedeniy. Yadernaya energetika" (Communications of Higher Schools. Nuclear Power Engineering) - Obninsk, 1999. - 7 pages, 3 tables. - References, 3 titles.*