

Применение СВЧ излучения для получения диоксидов актинилов керамического качества и для спекания керамических топливных таблеток

*м.н.с. Пилюшенко Константин Сергеевич
Лаборатория радиохимии*

Современные методы производства оксидного ядерного топлива, включающие производство порошка диоксида урана (UO_2) с его последующим прессованием и прокаливанием в керамические топливные таблетки, осуществляются в конвекционных печах электрического сопротивления и требуют больших энергетических затрат. Нами предложены и разработаны менее энергозатратные, альтернативные методы с применением сверхвысокочастотного (СВЧ) излучения для получения оксидов урана из его соединений, получения порошков оксидов актинидов денитрацией их азотнокислых растворов и спекания керамических топливных таблеток под воздействием СВЧ, которые могут быть использованы в качестве ядерного топлива. Ниже представлено краткое описание этих методов.

Впервые изучен процесс получения оксидов урана денитрацией его азотнокислых растворов под воздействием СВЧ излучения в условиях воздушной и восстановительной атмосферы в том числе в присутствии в растворах органических восстановителей, содержащих аминогруппы: карбогидразид (КГ), ацетгидроксамавая кислота (АГК), аминокислотная кислота, нитрат гидразина [1]. Показано, что присутствующие в растворах восстановители в процессе денитрации инициируют восстановление $U(VI)$ до оксида, близкого по составу к U_3O_8 , который способен интенсивно разогреваться при поглощении энергии СВЧ излучения и в восстановительной атмосфере превращаться в UO_2 . Определены условия термического превращения полученной смеси оксидов урана в порошок его диоксида, в которых содержание $U(IV)$ составляет не менее 99.2%, и не менее 99.6% его частиц имеют размеры от 25 до 400 мкм.

Показана возможность получения порошка диоксида урана из UO_3 в присутствии КГ и АГК при использовании СВЧ излучения [2]. Особенность применения СВЧ излучения заключается в возможности быстрого разогрева смесей порошка UO_3 с указанными органическими реагентами до температуры их разложения с образованием в объёме реактора инертной или восстановительной газовой атмосферы. Это позволяет осуществить процесс восстановления UO_3 до UO_2 даже в условия отсутствия подвода восстановительной атмосферы в одном реакционном сосуде и при температурах, не превышающих $500^{\circ}C$. При этом физические свойства порошка UO_2 соответствуют нормативным требованиям, предъявляемым к порошкам для последующего изготовления топливных таблеток.

Полученные данные об условиях использования СВЧ излучения для осуществления денитрационных процессов, описанные выше, были применены для получения порошков твердых растворов диоксида урана с 3 и 10 мас.% церия (имитатора америция) из их азотнокислых растворов [3]. Метод получения порошков указанного состава необходим для реализации последующего процесса дожигания Ам, извлеченного из ВАО, в реакторах на быстрых нейтронах с целью повышения радиационной безопасности при обращении с отходами, а также это позволит отказаться от глубинного захоронения ВАО. Была осуществлена СВЧ термическая денитрация модельных азотнокислых растворов, содержащих U и Th (имитатор Pu), образующихся в схемах восстановительной рекстракции (содержат непрореагировавшие органические восстановители) на заключительных стадиях Пурекс процесса переработки ОЯТ реакторов на быстрых нейтронах [4]. Денитрацию растворов проводили при воздействии СВЧ излучения в атмосфере аргона с водородом.

Таким образом, показана эффективность процесса получения порошка UO_2 керамического качества непосредственно из азотнокислых растворов, в том числе и твердых растворов оксидов U и Ce (имитатор Ам) и U и Th (имитатор Pu). Установлено,

что характеристики получаемых порошков UO_2 , $(U,Ce)O_2$, $(U,Th)O_2$ соответствуют требованиям ТУ 95414-2005 к порошкам керамического сорта для изготовления топливных таблеток [5]. При этом исключается образование маточных радиоактивных растворов, требующих последующего специального обращения.

Учитывая длительность и высокое энергопотребление печей сопротивления при спекании керамических таблеток ядерного топлива, применяемого в настоящее время, становится очевидной перспектива использования СВЧ излучения в этих процессах. Эксперименты по спеканию топливных таблеток диоксида урана проводились в сконструированной нами установке на основе модернизированной СВЧ печи с мощностью 2,1 кВт и частотой 2,45 ГГц. Для выбора оптимального режима спекания изучали зависимость плотности получаемых спеченных таблеток от условий прессования и спекания. В результате установили, что достижение требуемой плотности спеченных таблеток около $10,40 \text{ г/см}^3$ (95% от теоретической плотности UO_2 , равной $10,97 \text{ г/см}^3$) в восстановительной атмосфере происходит в температурном режиме, включающем выдержку при $1650 \pm 20^\circ\text{C}$ в течение не менее 4 часов. Открытая пористость таких таблеток составляет около 0,25 об.%, что соответствует допустимому пределу (не более 1 об.%) [6,7].

В заключении можно отметить, что в результате проведенных исследований разработаны научные основы новой технологии фабрикация топливных таблеток с использованием СВЧ излучения. Полученные результаты представляют несомненный интерес и свидетельствуют о перспективности применения СВЧ излучения в технологических процессах изготовления оксидного ядерного топлива, которые значительно менее энергозатратны по сравнению с конвективным нагревом, используемым в современных технологиях производства топлива.

1. Ю.М. Куляко, Т.И. Трофимов, **К.С. Пилюшенко** и др.// Получение порошков оксидов урана денитрацией его азотнокислых растворов с использованием СВЧ излучения// Радиохимия, 2019, т. 61, N 1, с. 3–6
2. **К.С. Пилюшенко**, С.Е. Винокуров, Ю.М. Куляко, и др.// Применение СВЧ-излучения для получения порошка диоксида урана из его триоксида// Радиохимия, 2020 (принята в печать)
3. Ю.М. Куляко, Т.И. Трофимов, **К.С. Пилюшенко** и др.// Получение твёрдых растворов оксидов урана с церием из их азотнокислых растворов с использованием СВЧ излучения// Радиохимия, 2019, т. 61, N 1, с. 661-664
4. Yu.M. Kulyako, T.I. Trofimov, **K.S. Pilyushenko**, et all// Production of mixed powders of actinide dioxides by thermal recovery denitration using microwave heating// Physics of Atomic Nuclei, 2020, Vol. 83, No. 10, pp. 1–4.
5. Порошок диоксида урана керамического сорта с содержанием изотопа уран-235 менее 5,0%. Технические условия ТУ 95414-2005
6. **К.С. Пилюшенко**, Ю.М. Куляко, Т.И. Трофимов и др.// Применение СВЧ излучения для денитрации раствора уранилнитрата последующего спекания топливных таблеток диоксида урана// Журнал прикладной химии, 2020 (принята в печать)
7. Ю.М. Куляко, Т.И. Трофимов, С.А. Перевалов, **К.С. Пилюшенко**, и др.// Применение СВЧ излучения для получения порошка диоксида урана из его нитратных растворов и триоксида урана и для спекания керамических топливных таблеток// Вопросы радиационной безопасности, 2020 (принята в печать)