

Окислительное разрушение брикетированного ядерного горючего в аппарате с кипящим слоем

АГЕЕНКОВ А. Т., САВЕЛЬЕВ В. Ф., ВАЛУЕВ Е. М., НИЛОВ Н. А., ГАЛЬПЕРИН Е. Н., РЫБАКОВ Е. И.

УДК 621.039.54

Предварительное диспергирование ядерного горючего в результате окисления двуокиси урана до закиси — окиси позволяет более выгодно использовать преимущества фтораторов с кипящим слоем [1—5]. В связи с этим проводился поиск оптимальной конструкции аппарата с кипящим слоем и основных параметров процесса окислительного разрушения брикетированного ядерного горючего твэлов энергетических реакторов. Характеристика применявшейся двуокиси урана приведена в таблице. В качестве инертной насадки в аппарате с кипящим слоем использовалась окись алюминия крупностью 100 и 500 мк.

Для выбора конструкции аппарата, обеспечивающей устойчивое псевдооживление смеси закиси — окиси урана с инертной насадкой при развитой поверхности контакта брикетов горючего с кипящим слоем и исключение возможности образования застойных зон, опробован ряд моделей (рис. 1).

Испытания показали, что без загрузки ядерного горючего устойчивое псевдооживление инертной насадки достигается при скорости газового потока 0,03—0,05 и 0,15—0,20 м/сек для крупности 100 и 500 мк соответственно.

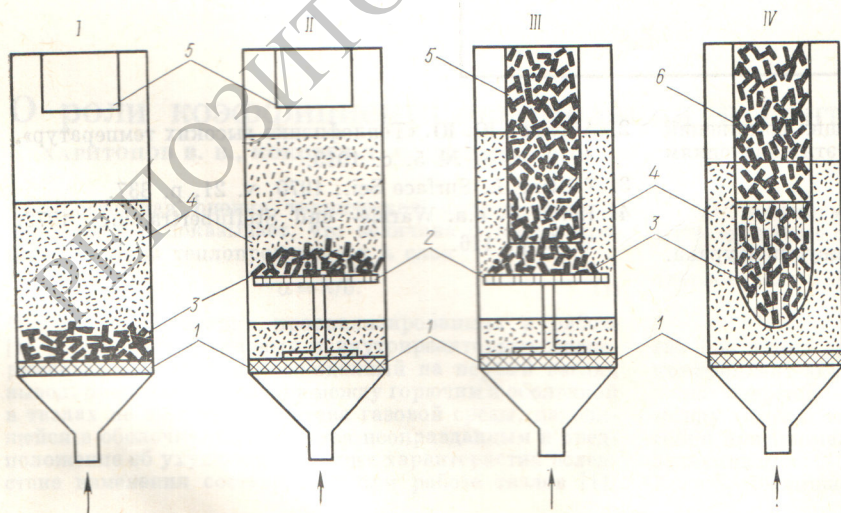
Загрузка брикетов двуокиси урана существенно влияет на псевдооживление насадки в аппарате. В моделях типов I—III контакт псевдооживленной насадки с двуокисью урана незначителен. В модели типа II псевдооживленная насадка находилась выше слоя брикетов. В моделях II и III кипящий слой разделялся на две зоны: выше и ниже слоя брикетов UO_2 . Внутри слоя двуокиси урана между брикетами наблюдались скопления малоподвижного порошка окиси алюминия или, наоборот, пустоты. В аппарате типа IV достигнуто более однородное псевдооживление во всем объеме, включая слой брикетов UO_2 . Отмечалась циркуляция порошка инертной насадки в свободном пространстве

Характеристика исходной двуокиси урана

Форма	Гранулометрический состав		Средний насыпной вес, г/см ³
	Размеры, мм	Количество, %	
Брикеты	Диаметр 12 Высота 20—25	100	5,75
Крупка	—4 +2	46,5	6,90
	—2 +1	30,0	
	—1	23,5	
Брикеты после термического вскрытия твэлов	—6 +6	29,0	6,70
	—8 +1	45,0	
	—1	26,0	

между брикетами, находящимися в окислительном контейнере. В дальнейшем исследовании проводили в аппарате типа IV, изготовленном из стали X18H10T диаметром 100 мм. Окислительный контейнер выполнен из стальных прутков с зазорами 3—5 мм.

Вначале навески по 200—500 г двуокиси урана были подвергнуты окислительной обработке воздухом в найденных оптимальных условиях псевдооживления. При температуре 420—450° С в течение 15 мин происходило полное разрушение компактной двуокиси урана с образованием мелкодисперсной закиси — окиси, равномерно распределенной в инертной насадке. В процессе опыта некоторая часть образующейся закиси — окиси урана вместе с потоком газа выносилась из аппарата к фильтру. Зависимости скорости разрушения брикетов UO_2 и выноса образовавшейся U_3O_8 от содержания



Р и с. 1. Схема моделей аппаратов:

1 — брикеты UO_2 на газораспределительной решетке, загрузочный патрубок вне зоны кипящего слоя; II — брикеты UO_2 на опорной решетке, загрузочный патрубок вне зоны кипящего слоя; III — брикеты UO_2 на опорной решетке, загрузочный патрубок внутри кипящего слоя; IV — брикеты UO_2 внутри решетчатого окислительного контейнера; 1 — газораспределительная решетка; 2 — опорная решетка; 3 — брикеты UO_2 ; 4 — кипящий слой; 5 — загрузочный патрубок; 6 — окислительный контейнер.

ее в кипящем слое для Al_2O_3 крупностью 100 мк выражаются уравнениями

$$V_{\text{окисл}} = 25 + 0,6 e^{-0,02 C};$$

$$V_{\text{вынос}} = 0,0032 C^2 - 0,008 C,$$

где $V_{\text{окисл}}$ — скорость разрушения брикетов UO_2 , г/дм³.мин, $V_{\text{вынос}}$ — скорость выноса U_3O_8 из аппарата, г/дм³.мин, C — концентрация U_3O_8 в кипящем слое, вес. % (от 3 до 35).

Показано, что при насыщении инертной насадки закисью — окисью урана свыше 30—40% смесь теряет способность к псевдооживлению, слеживается и трудно транспортируется.

В последующих опытах с навесками UO_2 до 10 кг окислительное разрушение двуокиси урана проводили до накопления в инертной насадке не более 35% U_3O_8 , после чего пневмотранспортом перемешали образующую смесь в сборник окисленного продукта. Газ очищали на металлокерамическом фильтре с размером пор 3—5 мк.

Из экспериментальных данных и анализа конечного продукта следует, что во всех опытах с брикетами и крупной двуокиси урана при температуре 450—500° С достигнуто полное их разрушение. Установлено, что увеличение крупности материала инертной насадки от 100 до 500 мк оказывает положительное стабилизирующее влияние на процесс окисления. В этом случае интенсифицируется процесс абразивного сдиранья с поверхности брикетов двуокиси урана закиси — окиси и отвода ее из зоны реакции окисления в кипящий слой. Брикеты UO_2 в промежуточной стадии окисления имеют округлую форму (рис. 2).

Разрушение двуокиси урана после термического вскрытия твэлов происходит также достаточно полно (на 99,7—99,8%). Однако примесь конструкционного материала оболочки (0,5—0,7 вес. %) вносит в процесс некоторые особенности. В первую очередь разрушаются брикеты, не содержащие компонентов оболочки. Затем окисляется остальной материал, представляющий собой частично разрушенные брикеты UO_2 с примесью циркония, железа и др. Следует отметить, что после удаления пневмотранспортом смеси закиси — окиси урана и окиси алюминия в аппарате остаются частицы материала оболочки твэлов до 70 г на 10 кг окисленного ядерного горючего, т. е. происходит дополнительная очистка урана от примесей.

Несколько партий полученной смеси инертного наполнителя и закиси — окиси урана подвергнуты фторированию в аппарате-фтораторе с кипящим слоем. Достигнуто практически полное превращение урана в гексафторид. Степень фторирования инертного наполнителя — окиси алюминия была менее 1%, что позволило многократно использовать его в цикле окисление — фторирование.

Поступило в Редакцию 12/IV 1973 г.



Рис. 2. Продукты окислительного разрушения:
а — исходные брикеты UO_2 ; б — промежуточный продукт; в — порошкообразная закись — окись урана.

ЛИТЕРАТУРА

1. Верятин У. Д. и др. Основные проблемы фторидного метода переработки твэлов АЭС на быстрых нейтронах. IV Женевская конференция (1971). Доклад № 448.
2. Anastasia J. e.a. Industr. and Engng Chem. Process and Design Developm., 1965, v. 4, № 3, p. 338.
3. Nucl. Appl., 1968, № 5, p. 320.
4. Прусаков В. Н. Докл. на 36 Международном конгрессе по промышленной химии, Брюссель, 1966.
5. Прусаков В. Н., Лебедев О. Г., Гужев Г. П. Исследование процесса фторирования закиси — окиси урана в кипящем слое. Докл. на II Симп. СЭВ по переработке облученного топлива. ЧССР, 1971.