

## **Особенности Проектирования, Изготовления и Внедрения Лабораторного и Промышленного Оборудования для Фабрикации Таблеток МОКС и Нитридного Топлива в РФ**

Ю.В. Чамовских, П.А. Шкурин, Н.Г. Сергеев (АО «СвердНИИХиммаш»)

А.Е. Глушенков, А.В. Давыдов (АО «ВНИИНМ»)

В.П. Смирнов, С.В. Павлов, А.Л. Денисов (ООО НПФ «Сосны»)

F. Renard, V. Reynaud (CHAMPALLE SAS)

Статья описывает опыт докладчиков по проектированию, изготовлению и внедрению оборудования для изготовления таблеток МОКС и нитридного топлива. Отличительные особенности смешанных уран плутониевых оксидных и нитридных порошков, вытекающие из них требования к основному технологическому (печи, пресса), и вспомогательному (перчаточные боксы) оборудованию. Решения для работы с порошками с низкой текучестью, транспортные системы в условиях коробления лодочек, выбор материалов футеровки и разделение газовых сред при спекании. Нормы и правила, применяемые при проектировании и изготовлении оборудования.

### Введение

На протяжении последнего десятилетия развитые страны и участники рынка мировой атомной энергетики ведут под эгидой международной конференции «Generation IV» разработку и строительство пилотных проектов ядерных энергетических установок т.н. «IV поколения», обладающих большей привлекательностью как с экономической точки зрения, так и с точки зрения безопасности, влияния на окружающую среду и риска нераспространения. Среди шести концепций, выбранных для реализации пилотных проектов, три основываются на технологиях реакторов на быстрых нейтронах. Две из трех – это концепции реакторов со свинцовым и натриевым теплоносителями, хорошо знакомые в Российской Федерации по эксплуатации реакторов АПЛ, РУ БН-600 и БН-800 [1].

В настоящее время в Российской Федерации действует федеральная целевая программа «Ядерные энерготехнологии нового поколения на период 2010–2015 годов и на перспективу до 2020 года», в рамках которой в сентябре 2015 года была запущена промышленная линия по фабрикации смешанного оксидного уран-плутониевого (МОКС) топлива, и финансируется проект «ПРОРЫВ», целью реализации которого является замыкание ядерно-топливного цикла путем внедрения в российскую энергетику реакторов на быстрых нейтронах со свинцовым и натриевым теплоносителями, использующих смешанное нитридное уран-плутониевое (СНУП) топливо, перерабатываемое на пристанционных ядерно-топливных циклах. В рамках этого проекта на площадке АО «СХК» ведется строительство первой очереди модуля фабрикация/рефабрикация (далее – МФР) данного типа топлива.

### Накопленный опыт

За период с 2010 по 2017 годы силами АО «СвердНИИХиммаш» и ООО НПФ «Сосны» при поддержке ряда предприятий, в том числе и АО «ВНИИНМ», по заказу Госкорпорации «Росатом» выполнены и продолжают выполняться работы по

разработке и изготовлению целого ряда комплексов, предназначенных для исследования порошков и изготовления таблеток МОКС и СЗУП топлива. Большинство проектов основаны на реализации по техническим требованиям заказчика цепочек камер, перчаточных боксов с интеграцией в них нестандартизированного технологического оборудования, наиболее важным из которого являются пресса и печи, разрабатываемые совместно с зарубежными партнерами, в числе которых разработчик и изготовитель прессов CHAMPALLE SAS. Назначение таких комплексов варьируется от исследовательских лабораторных работ до аналитической поддержки и промышленных производственных линий. В таблице 1 приведен перечень проектов, реализованных предприятиями за последние 3 года.

Таблица 1 – Проекты по тематике МОКС и СЗУП топлива

№ п/п	Наименование	Эксплуат. Организ.	Тип	Авторы-участники	Год сдачи
1	Комплекс по производству МОКС топлива	ФГУП «ГХК»	Пром. пр-во	АО «ВНИИНМ», АО «СвердНИИхиммаш», ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2015
2	Комплекс экспериментальных установок для изготовления порошков и таблеток (U,Pu,Np,Am)N	АО ГНЦ «НИИАР»	НИОКР	АО «ВНИИНМ», ООО НПФ «Сосны»	2015
3	Комплекс экспериментальных установок (КЭУ-2)	АО «СХК»	НИОКР	АО «ВНИИНМ», АО «СвердНИИхиммаш», ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2015
4	Участок технологического сопровождения МФР	АО «СХК»	Пром. пр-во	ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2017
5	Установки прессования таблеток и шашек МФР	АО «СХК»	Пром. пр-во	АО «ВНИИНМ», АО «СвердНИИхиммаш», ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2017
6	Установка карботермического синтеза МФР	АО «СХК»	Пром. пр-во	АО «ВНИИНМ», АО «СвердНИИхиммаш», ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2017
7	Установка спекания таблеток МФР	АО «СХК»	Пром. пр-во	АО «ВНИИНМ», АО «СвердНИИхиммаш», ООО НПФ «Сосны», CHAMPALLE SAS	2018

#### Свойства нитридного топлива

СЗУП топливо – керамический тип ядерного топлива, представляющий собой смесь монокрида обедненного урана с монокридом плутония. Монокрид урана/плутония в лабораторных условиях может быть получен несколькими путями, в том числе путем синтеза из металлического урана/плутония или путем плавки металлов в азотной атмосфере, но для промышленного применения наиболее подходящим

является метод карботермического синтеза, основанный на восстановлении оксидов урана/плутония углеродом в атмосфере азота [2].

Обладая рядом неоспоримых эксплуатационных преимуществ перед другими разрабатываемыми типами топлива, таких как большая плотность ЯДМ и связанный с ней коэффициент воспроизводства, на порядок большая, чем у оксидного топлива теплопроводность [3], СНУП топливо сложнее в производстве, чем МОКС топливо по следующим причинам:

- порошки нитридов урана и плутония, в отличие от оксидов, самовоспламеняются в воздушной среде даже при комнатной температуре (пирофорность), а также являются ярко выраженными «геттерами», поглощая кислород, влагу и прочие примеси из инертных / защитных газов;

- порошки нитридов обладают существенно худшей текучестью и хуже прессуются;

- неспечённые таблетки СНУП топлива более хрупкие и требуют более бережного с ними обращения;

- спекание нитридов происходит при температуре на  $\sim 100$  °С большей температуры спекания традиционного МОКС топлива и в строго определенной газовой-температурной среде, препятствующей образованию непригодных для использования в топливе форм:  $(U,Pu)_2N_3$  (т.н. «полторного нитрида») с одной стороны и металлической фазы с другой.

Перечисленные выше особенности накладывают дополнительные требования на традиционно используемые в производстве ядерного топлива элементы оборудования.

#### Технологическая последовательность

Ниже приведены основные этапы технологического процесса фабрикации таблеток СНУП топлива, основанного на карботермическом синтезе нитридов, заложенного в МФР:

- дозирование оксидов урана, плутония и сажи в необходимых пропорциях;
- смешивание;
- гранулирование;
- добавление пластификатора;
- прессование шашек;
- загрузка спрессованных шашек навалом в лодочку;
- карботермический синтез в садочных печах в течение двух суток;
- дробление полученных нитридных шашек;
- гранулирование нитридов;
- добавление пластификатора;
- прессование таблеток;
- упорядоченная укладка таблеток в лодочку;
- спекание таблеток в проходной печи в течение 12 часов;
- визуально-измерительный контроль и сортировка;
- передача на участок снаряжения твэлов.

#### Системы вентиляции боксов

Качественное сравнение требований к атмосфере боксов, предназначенных для работы с двуокисью урана, МОКС топливом и СНУП топливом приведено в таблице 2.

Таблица 2 – Требования к атмосфере боксов для работы с  $UO_2$ ,  $(U,Pu)O_2$ ,  $(U,Pu)N$

№ п/п	Параметр	$UO_2$	$(U,Pu)O_2$	$(U,Pu)N$
1	Рабочая атмосфера	воздушная	частично инертная	инертная обязательно
2	Требования к разрежению	гибкие	жесткие	жесткие
3	Требования к герметичности	гибкие	средние	жесткие

Рабочая атмосфера боксов для работы с двуокисью урана воздушная, а требования к герметичности продиктованы в первую очередь двумя факторами: необходимостью предотвратить попадание в порошок влаги, приводящей к «слеживанию» и ухудшению текучести порошка, а также доокислению диоксида в закись-окись что отрицательно сказывается на качестве конечного продукта.

Согласно рекомендациям МАГАТЭ [3], для снижения риска возникновения пожара, а также минимизации последствий его возникновения, *может быть необходимо* поддерживать в боксах инертную атмосферу.

Фактически в боксах для обращения с МОКС топливом инертная атмосфера не обязательна и может поддерживаться преимущественно на участках, работающих с порошком: от операций по дозированию до спекания таблетки. Разрежение в боксах для работы с МОКС топливом контролируется более жестко для ограничения радиационного воздействия (внутреннего облучения) на персонал вследствие выхода аэрозолей плутония в операторские помещения.

В случае боксов для обращения с нитридным топливом, в связи с пирофорностью нитридов урана и плутония, а также во избежание сорбции нежелательных компонентов (кислород, влага) на порошке, дополнительно к требованию по организации разрежения, инертная атмосфера должна жестко контролироваться по содержанию кислорода и влаги – не более 50 ppm. Совокупность этих двух требований означает, что существенное нарушение герметичности боксов с одной стороны приведет к пожару в случае включения аварийной вентиляции, а с другой стороны в случае её выключения приведет к выходу аэрозолей плутония в операторские помещения.

Поэтому с точки зрения требований НД разгерметизация бокса для работы со СНУП топливом является исходным событием для проектной аварии, а самим боксам в проектной документации присваивается класс безопасности 2Н по НП-016-05, требующий исключения из конструкции боксов разъемных соединений там, где это возможно, а там, где невозможно – контроля их герметичности.

АО «СвердНИИхиммаш» и ООО НПФ «Сосны» разработан метод контроля разъемных соединений, основывающийся на использовании двойных уплотнений и штуцеров, поддувающих в пространство между ними инертный газ с давлением порядка 3000 Па. В случае, если в соединении образуется течь – расход газа в уплотнении позволит её вовремя обнаружить.

Так как один бокс предусматривает, как правило, десятки уплотнений, комплексы контроля собраны в компактные шкафы (рисунок 1) и с задаваемой оператором частотой автоматически опрашивают каждый уплотняемый канал с выводом информации на ПК оператора.

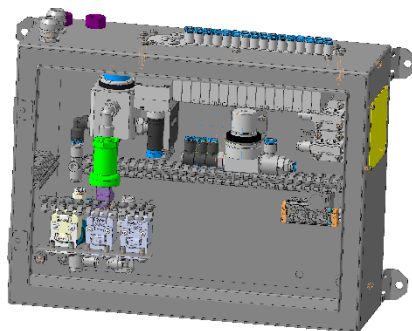


Рисунок 1 – Общий вид шкафа контроля уплотнений

### Транспортно-технологические системы

Перемещение порошков и полуфабрикатов нитридного топлива по производственным участкам и между ними также имеет свои особенности. На предприятиях, работающих с двуокисью урана, транспортировка порошков происходит в таре без биологической защиты, а передача спеченных таблеток между участками производится в открытом виде. На производствах как МОКС так и СНУП топлива из-за высокого радиационного фона технологический процесс полностью автоматический и не предусматривает выгрузки полуфабрикатов за пределы цепочек. Как было упомянуто выше, в дополнение к технологиям, применяемым на производстве МОКС топлива, при разработке технологического оборудования под нитриды всю производственную линию необходимо адаптировать под нетекучий, плохо прессуемый и хрупкий до своего спекания продукт.

#### *Плохая текучесть*

Ввиду сравнительно плохой текучести порошков при проектировании подающих порошок трубопроводов необходимо придерживаться угла наклона патрубков к вертикали не более 30 градусов. Дополнительно на данных линиях предусмотрен ряд вибропобудителей, а также в составе промежуточного бункера-накопителя для дополнительного продвижения порошка к матрице разработан и изготовлен побудитель порошка в форме штопора (рисунок 2). Все это оборудование настраивается и работает в автоматическом режиме.



Рисунок 2 – побудитель порошка в форме штопора

#### *Плохая прессуемость*

Для достижения удовлетворительных результатов прессования таблеток СНУП топлива в прессовом оборудовании реализованы алгоритмы многократного

прессования, позволяющие оператору при необходимости выполнить дополнительное сжатие прессовки с отдельно настраиваемыми усилием и скоростью (рисунок 3). Также реализован алгоритм подстройки параметров прессования под заданное оператором значение плотности или высоты таблеток, позволяющие обеспечить повторяемость результатов прессования.

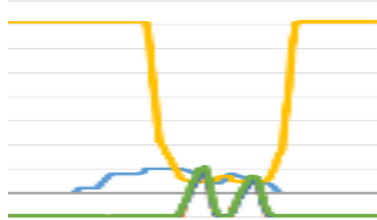


Рисунок 3 – График многократного прессования (справа), где зеленым – усилие на пуансоне, желтым – координата пуансона, синим – координата матрицы.

#### *Хрупкость прессовок*

Хрупкость не спеченных таблеток из нитридного порошка накладывает дополнительные ограничения на порядок обращения с ними как по отдельности, так и в технологической таре (далее – лодочке), предназначенной для автоматической транспортировки партий таблеток с участка прессования на участок спекания и самого спекания:

- перемещение индивидуальных таблеток на участок укладки и укладка таблеток в лодочки должна производиться с исключительной осторожностью, не допускается даже опрокидывание таблеток;
- загрузка таблеток в лодочки не может производиться «навалом»;
- таблетки должны укладываться в лодочки максимально плотно для исключения их опрокидывания при дальнейшем перемещении лодочек.
- боковые поверхности таблеток не должны соприкасаться во избежание большого процента брака, вызванным прикипанием таблеток друг к другу,

Выполнение вышеописанных требований потребовало применения специального укладчика с захватом на основе присоски, позволяющего осуществлять перенос таблетки в лодочку за её верхний торец (рисунок 4). Компрессор для создания разрежения на присоске располагается в боксе и использует внутрибоксовую инертную атмосферу, однако укладчик также может быть переоборудован для работы с внешним источником азота.

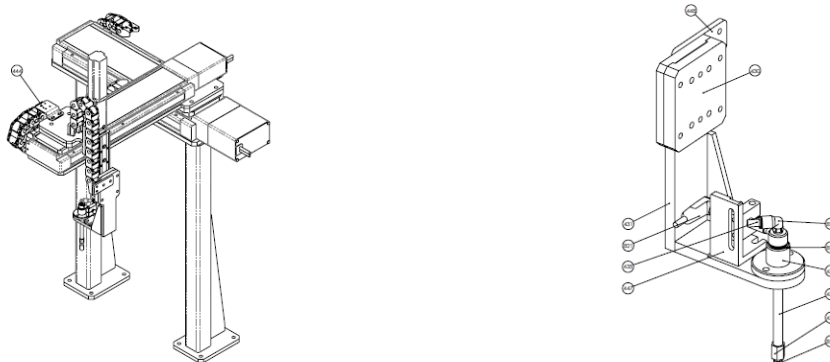


Рисунок 4 – Общий вид укладчика таблеток на основе присоски (слева) и захват укладчика (справа)

### Лодочки

Требования к плотности укладки таблеток в лодки также накладывает ограничения на конструкцию самих лодочек, например, предназначенная для укладки таблеток поверхность лодки не должна иметь радиальных скруглений поверхности во избежание падения таблеток (рисунок 5).

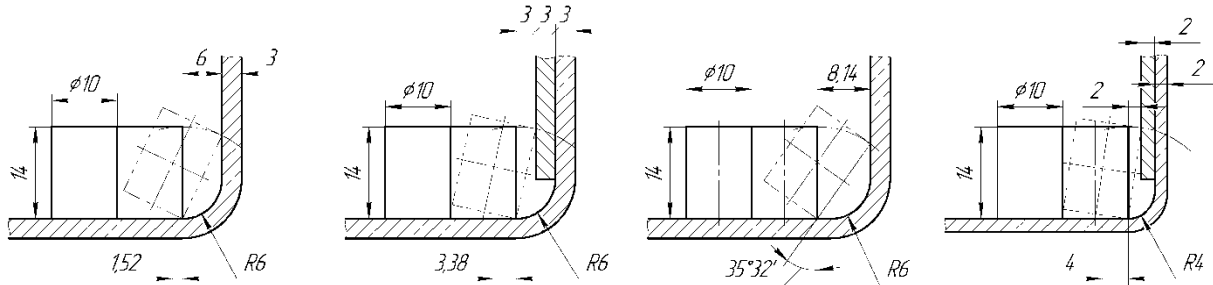


Рисунок 5 – Влияние конструкции лодочки на возможность падения в ней таблетки

Дополнительно, даже при использовании толстостенных лодочек ввиду их многократного использования в печах, неизбежно их охрупчивание и коробление, поэтому обращение с ними на установках без дополнительной оснастки допускается исключительно за их донную часть. Любые толкательные перемещения допустимы только с использованием прямоугольных подложек толщиной по крайней мере 20 мм. Для учета данных требований на установках прессования используются устройства подъемно-перегрузочные. Всего было проработано 14 вариантов конструкции лодочек установки спекания и 7 вариантов лодочки карботермического синтеза (рисунок 6). В окончательной конструкции в качестве материала лодочек для КТС и спекания таблеток выбран вольфрам.

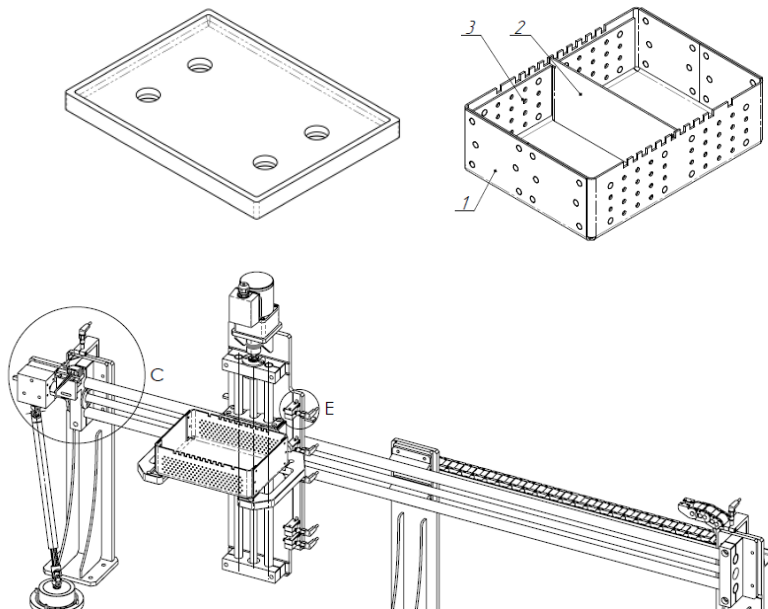


Рисунок 6 – Варианты подложки (слева) и лодочки (справа), а также устройство перегрузки лодочек (снизу) для использования в линии фабрикации СНУП топлива

### Тип печи спекания

Для использования в промышленном производстве нитридов концепция комплекса из нескольких горизонтальных садочных печей для процесса спекания таблеток была признана негодной, т.к. во-первых термоциклирование садочных печей без принудительного охлаждения существенно сказывается на их производительности и сроке службы, а во-вторых каждая из печей будет неизбежно иметь свои особенности изготовления, свои погрешности в расходе процессного газа, давлении и температуре. Проработка доступных в настоящее время технологий показала целесообразность использования проходной печи толкательного типа.

### Газовые среды печей

Во избежание образования в топливе менее плотных форм нитридов, атмосфера печи карботермического синтеза и атмосфера печи спекания должны строго соответствовать требованиям не только по содержанию в них влаги и кислорода, но и по содержанию азота.

В отличие от печей МОКС топлива, где для предотвращения образования закись-окиси урана при спекании достаточно единожды сменить атмосферу на азот и обратно, в случае со СНУП топливом:

- в цикле карботермического синтеза нагрев и выдержка должны выполняться в азотной, а затем азот-водородной (для удаления излишков углерода) среде, после чего перед охлаждением среда должна быть сменена на аргон во избежание образования «полуплотных» нитридов;

- в цикле спекания нагрев и охлаждение таблеток должны осуществляться в атмосфере аргона с чистотой по азоту не менее 0,1 % об., а выдержка осуществляется при температуре 1900 °С в атмосфере азота с концентрацией не менее 50 % об. для исключения уноса азота и образования в таблетках металлической фракции.

Последний пункт являлся наиболее сложной в реализации задачей, т.к. необходимо было добиться эффективного разделения инертных газов в едином пространстве канала проходной печи, причем для обеспечения ее ремонтпригодности перекрывать сквозное пространство канала барьерами с зазором между стенками канала и лодочкой менее 50 мм было неприемлемо.

Для решения этой задачи был проведен ряд расчетов в программном комплексе ANSYS FLUENT, позволивший подобрать оптимальный расход реакционного и защитного газа, а также определить конструкцию печи (рисунок 7), позволяющую эффективно разделить газовые среды в печном канале с выполнением требуемого температурного режима (рисунок 8).

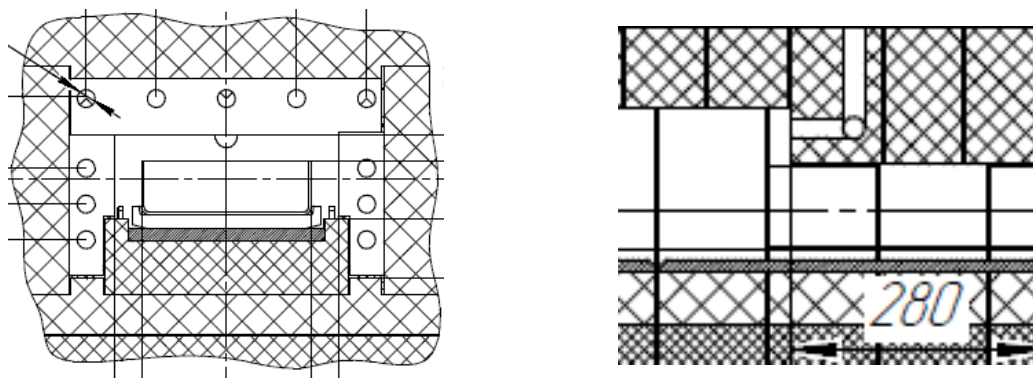


Рисунок 7 – эскиз конструкции газового барьера проходной печи



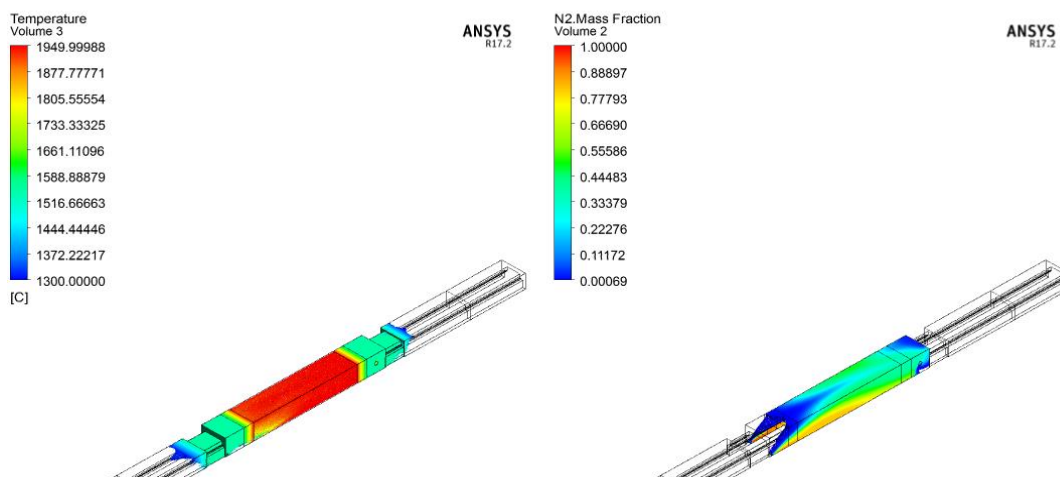


Рисунок 8 – Результаты расчетов температурного (слева) и газового (справа) распределения при одном из вариантов газового барьера

### Подбор материалов

Отдельной задачей при разработке электротермического оборудования для фабрикации нитридного топлива являлся подбор стойких в реакционной газовой среде материалов. Максимальные температуры протекания реакции карботермического синтеза и спекания таблеток составляют 1700 и 1950 градусов, а газовые среды – азот-водородная смесь, в присутствии углерода, угарного газа, синильной кислоты и углеводородов. Традиционно используемый при фабрикации МОКС топлива оксид алюминия в условиях спекания таблеток просто испарялся.

В ходе ресурсных испытаний, проведенных в АО «ВНИИНМ», для целей использования в печи спекания были также забракованы различные марки высокочистого и легированного оксида алюминия, оксида циркония с добавлением кальция и магния, графита, карбида кремния, и других композитных углеродосодержащих материалов (рисунок 9).

Наилучший результат был достигнут с применением в высокотемпературной зоне печи спекания оксида циркония, стабилизированного иттрием. Для условий эксплуатации печей карботермического синтеза графитовые и керамические материалы оказались нестойкими и в качестве материала реторты печи выбран вольфрам.



Рисунок 9 – фотографии образцов до (слева) и после (справа) ресурсных испытаний

### Выводы

Как промышленная, так и лабораторная реализация технологии фабрикации нитридного топлива предъявляют более высокие требования к используемым обслуживающему и основному технологическому оборудованию. Имеются возможности по оптимизации оборудования производственных линий как с технологической точки зрения, так и с точки зрения материального и конструктивного исполнения.

Тем не менее, задачи, которые ставятся перед оборудованием, применяемым для фабрикации нитридного топлива, решаемы в условиях текущего состояния развития науки и техники.

Накопленный опыт может быть использован во вновь проектируемых фабрикацииных заводах, следующих концепции пристанционного ядерного топливного цикла, а также в других проектах, целью которых является исследование или производство высокотоксичных и чувствительных к воздушной среде порошков, как в международной атомной отрасли, так и в смежных отраслях.

### Литература

1. Generation IV Nuclear Reactors, World Nuclear Association, London, United Kingdom, 2016
2. С.В. Алексеев, В.А. Зайцев, Нитридное топливо для ядерной энергетики, Москва, Техносфера, 2013
3. Uddharan Basak, Fabrication, Properties and Irradiation behavior of MOX, Carbide and Nitride Fuels, Inert Matrix Fuels with and without Minor Actinides, IAEA, Vienna, Austria, 2009