



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21)(22) Заявка: 2012133125/07, 01.08.2012

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
01.08.2012

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 01.08.2012

(43) Дата публикации заявки: 10.02.2014 Бюл. № 4

(45) Опубликовано: 10.06.2014 Бюл. № 16

(56) Список документов, цитированных в отчете о поиске: Д.Е.Александров, В.А. Волкович, Б.Д.Васин, Д.С.Мальцев "Образование и поведение соединений урана (V) в хлоридных расплавах" // Известия Вузов, Ядерная энергетика, 2010, N3, С.124-132. В.А.Волкович, Б.Д.Васин, Д.Е.Александров, Т.К.Хабибуллин "Взаимодействие уранилсодержащих хлоридных расплавов с водородом" // Расплавы, 2009, вып.5, С.27-30. SU1746874A1, 10.02.1997

Адрес для переписки:

620002, г.Екатеринбург, К-2, ул. Мира, 19, УрФУ,
Центр интеллектуальной собственности, Т.В.
Маркс

(72) Автор(ы):

Волкович Владимир Анатольевич (RU),
Васин Борис Дмитриевич (RU),
Мальцев Дмитрий Сергеевич (RU),
Александров Денис Евгеньевич (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Федеральное государственное автономное
образовательное учреждение высшего
профессионального образования "Уральский
федеральный университет имени первого
Президента России Б.Н. Ельцина" (RU)

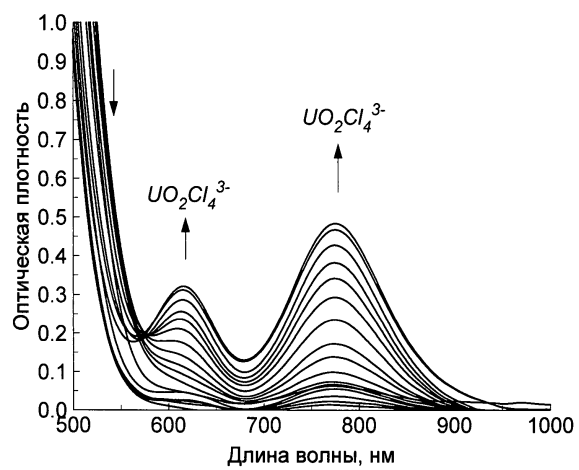
(54) СПОСОБ БЕСТОКОВОГО ПОЛУЧЕНИЯ УРАНА (V) В РАСПЛАВЛЕННЫХ ХЛОРИДАХ ЩЕЛОЧНЫХ МЕТАЛЛОВ

(57) Реферат:

Изобретение относится к области создания пирохимических технологий переработки облученного ядерного топлива, в частности оксидного.

Способ бестокового получения урана (V) в расплавленных хлоридах щелочных металлов (NaCl-2CsCl, NaCl-KCl, LiCl-KCl), содержащих ионы урана (VI), сущность которого заключается в выдержке в атмосфере над расплавом металлического циркония в качестве геттера при температуре 550-750°C в течение 180-250 минут.

При этом происходит образование пятивалентной формы урана по реакции термического разложения хлорида уранила, ускоренной металлическим цирконием, о чем свидетельствуют записанные спектры поглощения расплава. Техническим результатом является возможность бестокового получения хлоридных расплавов с высоким содержанием пятивалентного урана без внесения посторонних компонентов в расплав. I ил.



Фиг.1

RU 2518426 C2

RU 2518426 C2



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21)(22) Application: 2012133125/07, 01.08.2012

(24) Effective date for property rights:
01.08.2012

Priority:

(22) Date of filing: 01.08.2012

(43) Application published: 10.02.2014 Bull. № 4

(45) Date of publication: 10.06.2014 Bull. № 16

Mail address:

620002, g.Ekaterinburg, K-2, ul. Mira, 19, UrFU,
Tsentr intellektual'noj sobstvennosti, T.V. Marks

(72) Inventor(s):

Volkovich Vladimir Anatol'evich (RU),
Vasin Boris Dmitrievich (RU),
Mal'tsev Dmitriy Sergeevich (RU),
Aleksandrov Denis Evgen'evich (RU)

(73) Proprietor(s):

Federal'noe gosudarstvennoe avtonomnoe
obrazovatel'noe uchrezhdenie vysshego
professional'nogo obrazovanija "Ural'skij
federal'nyj universitet imeni pervogo Prezidenta
Rossii B.N. El'tsina" (RU)(54) **METHOD FOR NON-CURRENT PRODUCTION OF URANIUM (V) IN MOLTEN ALKALI METAL CHLORIDES**

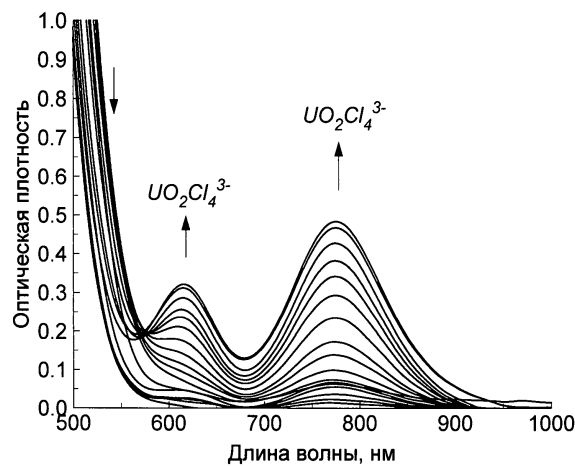
(57) Abstract:

FIELD: physics, atomic power.

SUBSTANCE: invention relates to pyrochemical technologies of processing irradiated nuclear fuel, particularly oxide fuel. The method for non-current production of uranium (V) in molten alkali metal chlorides (NaCl-2CsCl, NaCl-KCl, LiCl-KCl), containing uranium (VI) ions, involves holding zirconium metal in the atmosphere over the melt as a getter at temperature of 550-750°C for 180-250 minutes. Uranium (V) is formed via thermal decomposition of uranyl chloride, which is accelerated by zirconium metal as shown by recorded absorption spectra of the melt.

EFFECT: non-current production chloride melts with high content of uranium (V) without introducing foreign components into the melt.

1 dwg



Фиг.1

Изобретение относится к области создания пирохимических технологий переработки облученного ядерного топлива, в частности оксидного. Известно, что в качестве рабочих сред для организации технологических процессов лучше всего использовать расплавленные смеси хлоридов щелочных металлов. Растворение оксидного топлива в таких системах сопровождается образованием хлоридов уранила (UO_2Cl_2). Наряду с ураном (VI) в расплавах может присутствовать уран (V) (UO_2Cl), который играет очень большую роль при проведении тех или иных технических операций, выступая в качестве окислителя или восстановителя по отношению к отдельным продуктам деления и существенно увеличивая выход по току при электролитическом выделении диоксида урана. Поэтому зачастую целесообразно обеспечивать присутствие урана (V) в технологических расплавах.

Анализ уровня техники в данной области свидетельствует о наличии разных способов получения урана (V) в хлоридных расплавах:

1. T.Nagai, T.Fujii, O.Shirai and H.Yamana "Study on redox equilibrium of UO_{22+}/UO_2 in molten NaCl-2CsCl by UV-Vis Spectrophotometry", Journal of nuclear science and technology, June 2004, Vol.41, No 6, p.690-695. Показана возможность получения расплава NaCl-2CsCl, содержащего пятивалентный уран, при электролитическом восстановлении предварительно растворенного в расплаве урана (VI). К недостаткам данного способа следует отнести необходимость использования довольно сложной аппаратуры для обеспечения необходимых режимов процессов электролиза.

2. В.А.Волкович, Б.Д.Васин, Д.Е.Александров, Т.К.Хабибуллин «Взаимодействие уранилсодержащих хлоридных расплавов с водородом» // Расплавы, 2009, вып.5, С.27-30. Показана возможность образования ионов урана (V) в расплавах хлоридов щелочных металлов (NaCl-2CsCl, NaCl-KCl, 3LiCl-2KCl) при барботировании газообразного водорода через расплав. Такой способ восстановления урана (VI) до урана (V) является достаточно простым. Его недостаток в использовании эффективного замедлителя нейтронов, что приводит к снижению ядерной безопасности систем, содержащих делящиеся материалы.

Наиболее близким к заявленному техническому решению является способ получения расплавов, содержащих ионы урана (V), на основе хлоридов щелочных металлов, образующиеся при взаимодействии уранилсодержащих хлоридных расплавов с металлическим молибденом. Д.Е.Александров, В.А. Волкович, Б.Д.Васин, Д.С.Мальцев «Образование и поведение соединений урана (V) в хлоридных расплавах» // Известия Вузов, Ядерная энергетика, 2010, №3, С.124-132. При выдержке металлического молибдена в контакте с расплавом в интервале температур 550-750°C, происходит восстановление уранил ионов до пятивалентного состояния и далее, с течением времени, до диоксида, при этом в расплав переходят ионы молибдена (III) с образованием $MoCl_3$. Замена газообразного восстановителя металлическим обеспечивает большую безопасность высокотемпературного технологического процесса. Существенным недостатком данного способа является загрязнение расплава посторонними компонентами (Mo^{3+}).

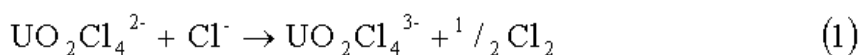
Предлагаемый способ позволяет получать уран (V) в хлоридных расплавах, содержащий UO_2Cl_2 , при использовании металлического восстановителя, в частности циркония, исключая попадания продуктов его окисления в солевую фазу.

Для достижения этого технического результата металлический цирконий, выполняющий роль геттера, размещают в газовом пространстве на керамическом подвесе над хлоридным расплавом, содержащим уран (VI), и выдерживают при

температурах 550-750°C в течении 180-250 минут.

5 Сущность предлагаемого способа заключается в том, что получение урана (V) в расплавленных смесях хлоридов щелочных металлов, содержащих уран (VI), осуществляется посредством взаимодействия содержащегося в них урана (VI) с металлом-восстановителем при температурах 550-750°C, отличающийся тем, что в качестве металла-восстановителя используют цирконий, который помещают в пространство над расплавом на керамическом подвесе и выдерживают в течение 180-250 минут.

10 Накопление пятивалентного урана в расплаве происходит при термическом разложении уранил-ионов по реакции (1). Металлический цирконий реагирует с хлором по реакции (2) и сдвигает равновесие реакции (1) вправо, тем самым значительно ускоряя процесс:



Количество образующегося пятивалентного урана в расплаве зависит от времени выдержки циркониевого геттера в атмосфере над расплавом.

20 Техническим результатом, обеспечиваемым приведенной совокупностью признаков, является получение расплава, содержащего ионы урана (V) и не загрязненного посторонними элементами, на основе хлоридов щелочных металлов.

Пример

30 Проведены эксперименты по получению урана (V) в эвтектической смеси хлоридов натрия и цезия с растворенным в ней предварительно приготовленного образца урана (VI). Для контроля за процессом восстановления U(VI) до U(V) использовали метод высокотемпературной электронной спектроскопии. Поэтому опыты проводили в специальных герметичных кварцевых пробирках с приваренными в нижней части кюветами из оптического кварца. Исследуемый расплав находился в кюветах, над расплавом размещали циркониевый геттер (в виде стружки), закрепленный на керамическом подвесе. В ходе эксперимента снимали электронные спектры поглощения в видимой области на высокотемпературной установке AvaSpec - 2048FT-2-SPU. Характерная для всех случаев спектральная картина представлена на фигуре 1

35 Как видно из спектров, в ходе реакции восстановления поглощение в видимой области спектра возрастало, и появлялись полосы, соответствующие поглощению комплексных хлоридных ионов $\text{UO}_2\text{Cl}_4^{3-}$, образующихся по реакции (1).

Таким образом, показана возможность получения урана (V) в расплавах на основе хлоридов щелочных металлов, содержащих ионы уранила.

Формула изобретения

40 1. Способ бестокового получения урана (V) в расплавленных смесях хлоридов щелочных металлов, содержащих уран (VI), посредством взаимодействия содержащегося в них урана (VI) с металлом-восстановителем при температурах 550-750°C, отличающийся тем, что в качестве металла-восстановителя используют цирконий, который помещают в пространство над расплавом и выдерживают в течение 180-250 минут.

45