

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(11) **045726**

(13) **B1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента  
**2023.12.20**

(51) Int. Cl. **G21C 21/02 (2006.01)**

(21) Номер заявки  
**202293359**

(22) Дата подачи заявки  
**2020.07.23**

---

(54) **СПОСОБ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТАБЛЕТИРОВАННОГО ТОПЛИВА ИЗ УРАН-МОЛИБДЕНОВЫХ ПОРОШКОВ**

---

(43) **2023.03.30**

(56) RU-C1-2360308  
RU-C1-2421834  
FR-B1-3012127  
US-A-4985183

(86) **PCT/RU2020/000390**

(87) **WO 2022/019798 2022.01.27**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:  
**АКЦИОНЕРНОЕ ОБЩЕСТВО  
"ТВЭЛ" (RU)**

(72) Изобретатель:  
**Карпюк Леонид Александрович,  
Лысиков Александр Владимирович,  
Михеев Евгений Николаевич,  
Миссорин Денис Сергеевич, Новиков  
Владимир Владимирович, Сивов  
Роман Борисович, Шипунов Николай  
Иванович (RU)**

(74) Представитель:  
**Вербицкий С.В. (RU)**

---

(57) Изобретение относится к атомной промышленности и может быть использовано при изготовлении топливных таблеток из уран-молибденовых металлических порошков, обогащенных ураном 235 до 7%, для тепловыделяющих элементов ядерных реакторов. Спекание таблеток осуществляют в инертной среде аргона в температурном диапазоне от 1100°C до 1155°C, а в качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с размером фракции 160 мкм с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%. При этом порошок предварительно нагревают при температуре 500°C в течение 10-20 часов (в среде аргона), с последующим холодным прессованием таблеток в матрице усилием до 950 МПа. По другому варианту изготовления уран-молибденовых таблеток со связующим веществом (пластификатором) перед спеканием таблетки нагревают в среде аргона от 300°C до 450°C в течение 2-4 часов для удаления связующего. Изобретение позволяет увеличить ураноемкость топлива, уменьшить количество тепла, накопленного в активной зоне ядерного реактора, и снизить энерговыделения в случае нарушения нормальных условий эксплуатации ядерного реактора, что позволит повысить его безопасность и аварийную устойчивость.

---

**045726**  
**B1**

**045726**  
**B1**

### Область техники

Изобретение относится к атомной промышленности и может быть использовано при изготовлении топливных таблеток из уран-молибденовых металлических порошков, обогащенных ураном 235 до 7%, для тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) ядерных реакторов.

#### Предшествующий уровень техники

Общеизвестная стандартная технология получения топливных таблеток при производстве керамического ядерного топлива из диоксида урана (обогащенного ураном 235 до 5%) включает: получение и подготовку пресс-порошка диоксида урана (в смеси со связующим), прессование таблеток в матрице, спекание таблеток в газообразной среде, сухое или мокрое шлифование таблеток, сушку и контроль таблеток на соответствие требованиям технических условий и чертежа, упаковку годной продукции, передачу ее на снаряжение ТВЭЛов ядерных реакторов (Разработка, производство и эксплуатация тепловыделяющих элементов энергетических реакторов. Под редакцией Ф.Г. Решетникова - М: Энергоатомиздат, 1995г., книга 1, с.93 - с.106).

Известен способ получения уран-молибденового сплава U-9 мас.% молибдена при помощи холодного прессования с последующим спеканием [Eiss A.L. Kalish H.S. 3<sup>rd</sup> Nucl. Eng. And Sci. Conference, USA, Paper 178, 1958]. В данном способе порошки урана и молибдена смешивали в течение 2 часов без добавления связующего вещества. После смешивания порошков урана и молибдена осуществляли прессование с получением брикетов длиной ~4,5 см и квадратным сечением 1,9 см на 1,9 см, в также брикетов цилиндрической формы. Спекание осуществляли в течение 4 часов в вакууме при температуре 1150°C. Металлографическая проверка холоднопрессованных и спеченных образцов показала, что сплавляемые элементы полностью реагируют друг с другом. Плотность полученных таблеток составила 17,18 г/см<sup>3</sup>.

Недостатком данного способа является то, что в полученных таким способом образцах наблюдается неравномерное распределение молибдена по всему объёму и необходимость создания высокого давления при холодном прессовании смешанных порошков урана и молибдена.

Известен также способ изготовления керамических топливных таблеток для ТВЭЛов ядерного реактора, включающий: подготовку пресс-порошка диоксида урана в смеси со связующим, прессование таблеток в две стадии и их спекание (см. патент РФ № 2421834, МПК G21C 3/02, БИ №17 от 20.06.2011 г.).

Недостатком данного способа является двух стадийность прессования таблеток из диоксида урана и использование пластификатора при приготовлении пресс-порошка.

Наиболее близким является способ изготовления керамических топливных таблеток для ТВЭЛов ядерного реактора (патент РФ № 2360308 МПК G21C 3/62, БИ №18 от 27.06.2009 г.), включающий: подготовку пресс-порошка диоксида урана, обогащенного ураном 235 до 1,6-5%, постадийное смешивание с сухим связующим (не содержащим металлы) и порошком закиси-окиси урана, прессование таблеток в матрице, термическое удаление связующего, спекание таблеток в газообразной восстановительной среде, мокрое шлифование таблеток алмазным кругом, сушку и отбраковку таблеток.

Недостатком способа является то, что способ требует значительных энергозатрат при прессовании, а также полученное топливо обладает меньшей ураноемкостью.

#### Раскрытие изобретения

Задачей изобретения является разработка способа изготовления таблетированного топлива из уран-молибденовых сплавов обогащенных по урану 235 до 7% для тепловыделяющих элементов ядерных реакторов, при использовании которого повышается безопасность условий эксплуатации ядерного реактора и эффективность его работы.

Технический результат предлагаемого изобретения по первому и второму варианту направлен на получение уран-молибденовых таблеток обогащенных по урану 235 до 7% для ТВЭЛов ядерных реакторов, что приводит к увеличению ураноемкости топлива, уменьшению количества тепла, накопленного в активной зоне ядерного реактора и снижению энерговыделения в случае нарушения нормальных условий эксплуатации ядерного реактора, что позволит повысить его безопасность и аварийную устойчивость.

Технический результат по первому варианту достигается в способе изготовления таблетированного топлива из уран-молибденовых порошков для тепловыделяющих элементов ядерного реактора, включающем подготовку порошка, прессование таблеток в матрице, спекание их в газообразной среде, шлифование, сушку, отбраковку таблеток, причем спекание таблеток осуществляют в инертной среде, а в качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с обогащением по урану 235 до 7% и с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%. Размер фракции уран-молибденового порошка составляет не более 160 мкм. Перед прессованием таблеток в матрице уран-молибденовый порошок нагревают в среде аргона при температуре 500°C в течение 10-20 часов. Прессование таблеток в матрице осуществляют усилием до 950 МПа. Спекание таблеток проводят в среде аргона при температуре 1100-1155°C в течение 4-12 часов.

Технический результат по второму варианту достигается в способе изготовления таблетированного топлива из уран-молибденовых порошков для тепловыделяющих элементов ядерного реактора, вклю-

чающем подготовку порошка, постадийное смешивание со связующим, прессование таблеток в матрице, термическое удаление связующего, спекание таблеток в газообразной среде, шлифование, сушку, отбраковку таблеток, причем спекание таблеток осуществляют в инертной среде, а в качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с обогащением по урану 235 до 7% и с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%. Размер фракции уран-молибденового порошка составляет не более 160 мкм. Прессование таблеток в матрице осуществляют усилием до 950 МПа. Термическое удаление связующего осуществляют путем нагревания таблеток в среде аргона при температуре от 300°C до 450°C в течение 2-4 часов. Спекание таблеток проводят в среде аргона при температуре 1100-1155°C в течение 4-12 часов.

Такая технология получения таблетированного топлива из уран-молибденовых металлических порошков для твэлов ядерных реакторов, позволяет получать уран-молибденовые таблетки с обогащением по урану 235 до 7%, содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.% и с плотностью таблеток не ниже 15,7 г/см<sup>3</sup> (более 90% от теоретической плотности). Эффективность работы ядерного реактора с топливом из уран-молибденовых таблеток повышается вследствие повышенной теплопроводности уран-молибденового топлива по сравнению с применяемым топливом из диоксида урана и использование более низкого обогащения по урану 235, так как плотность уран-молибденовых таблеток в 1,5 раза больше плотности таблеток из диоксида урана. Повышенная по массе урана загрузка топлива в ядерный реактор вследствие более высокой плотности уран-молибденового сплава (от 9,0 до 10,5 мас.%) по сравнению с плотностью диоксида урана позволяет увеличить продолжительность цикла работы ТВС в реакторе без необходимости увеличения обогащения топлива. Плотность диоксида урана по урану составляет 9,7 г/см<sup>3</sup>, а плотность уран-молибденового сплава (от 9,0 до 10,5 мас.%) по урану составляет ~15,75 г/см<sup>3</sup>. Таким образом, при одинаковой загрузке уран-молибденового топлива в реактор количество делящего компонента возрастает и составляет ~60%.

Известно [В.В. Калашников, В.В. Титов, Г.Я. Сергеев, А.Г. Самойлов. Уран-молибденовые сплавы в реактростроении, журнал, Атомная энергия, том 5, выпуск 4, октябрь 1958г., с.422], что при отпуске  $\gamma$ -сплава U-Mo в температурном интервале 350-550°C происходит превращение  $\gamma$ -фазы в эвтектоидную смесь  $\alpha$ -урана и интерметаллида U<sub>2</sub>Mo ( $\gamma'$ -фаза). Однако этот процесс протекает медленно. При выдержке исходного порошка в вакууме в течение от 10 до 20 часов при температуре 500°C происходит частичное разделение фаз с получением  $\gamma$ -фазы, эвтектоидной смеси  $\alpha$ -фазы и  $\gamma'$ - фазы. Использование порошка, представляющего собой эвтектоидную смесь фаз, позволяет получать прочные "сырые" таблетки при меньших усилиях прессования (до 950 МПа). Последующее спекание таких прессовок (таблеток) при температуре выше 1100°C сопровождается обратным полным переходом эвтектоида в  $\gamma$ -состояние.

Оптимальный результат достигается при выдержке, исходного металлического порошка уран-молибдена с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%, в инертной газовой среде при температуре 500°C в течение от 10 до 20 часов, за счет того, что исходный металлический порошок уран-молибдена в виде  $\gamma$ -фазы подвергается частичному разделению фаз до  $\gamma$ -фазы, эвтектоидной смеси  $\alpha$ -фазы и  $\gamma'$ -фазы, все это позволяет получать прочные "сырые" таблетки при усилиях прессования до 950 МПа.

Снижение содержания молибдена в исходном уран-молибденовом порошке менее 9,0 мас.% приводит к повышенной плотности спеченных уран-молибденовых таблеток (до 19,05 г/см<sup>3</sup> при нулевом содержании молибдена), а повышение содержания молибдена в исходном уран-молибденовом порошке более 10,5 мас.%, приводит к снижению плотности таблеток, что не допускается техническими требованиями на изготовление таблетированного топлива для ядерных реакторов.

Повышение температуры спекания выше 1155°C приводит к расплавлению уран-молибденовой таблетки, а температура менее 1100°C не позволяет получить таблетку без внутренних пор. При этом плотность таблетки остается низкой и составляет всего 13-14 г/см<sup>3</sup>.

Наилучшие результаты достигнуты на уран-молибденовых таблетках с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.% при температуре спекания (в инертной газовой среде) от 1100°C до 1155°C в течение от 4 до 12 часов.

Разработанный способ позволяет получить  $\gamma$ -фазу из уран-молибденовых порошков для твэлов ядерных реакторов, при этом молибден является основным легирующим элементом, способствующим сохранению  $\gamma$ -фазы урана во всей области рабочих температур твэла. Молибден не только модифицирует кинетику фазовых превращений для получения беспорядочно ориентированной мелкозернистой структуры, но и стабилизирует  $\gamma$ -фазу урана, вследствие этого повышается эффективность работы твэла.

Вследствие того, что теплопроводность уран-молибденового топлива выше, чем у топлива из диоксида урана, все это позволяет уменьшить количество накопленного в активной зоне реактора тепла и, тем самым снизить энерговыделение в случае нарушения нормальных условий эксплуатации ядерного реактора, повысив его безопасность и соответственно устойчивость к аварийным ситуациям.

#### **Осуществление изобретения**

Ниже приведены примеры реализации предлагаемого способа изготовления уран-молибденовых топливных таблеток.

Пример 1 (по первому варианту исполнения). В качестве исходного порошка используют уран-

молибденовый порошок с содержанием молибдена в сплаве 9,0 мас.%, полученный методом центробежного распыления из слитка этого же сплава, с обогащением по урану 235 до 7%. Центробежное распыление уран-молибденового слитка с содержанием молибдена в сплаве 9,0 мас.% позволяет получить равномерное содержание молибдена в исходном порошке. Порошок просеивают через сито с размером ячейки 160 мкм. Просеянный порошок уран-молибдена с содержанием молибдена 9,0 мас.% нагревают при температуре 500°C в течение 20 часов в вакуумной печи СШВЭ с вертикальной загрузкой (в среде аргона). Полученный порошок прессуют в цилиндрической матрице при давлении прессования 750 МПа без добавления связующего (пластификатора). Таблетки спекают в среде аргона (при содержании воды не более 80 ppm) при температуре (1125<sup>+10/-5</sup>)°C при изотермической выдержке 4 часа в печи СШВЭ (или XERION XVAC-2200). Нагрев до изотермической выдержки осуществляют в потоке аргона 1 л/мин со скоростью нагрева не более 5°C/мин с последующим охлаждением в статической атмосфере аргона со скоростью охлаждения (15-20)°C/мин. После этого проводят шлифование, сушку и отбраковку таблеток на соответствие техническим требованиям.

Пример 2 (по первому варианту исполнения). В качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с содержанием молибдена в сплаве 10,5 мас.%, полученный методом центробежного распыления из слитка этого же сплава, с обогащением по урану 235 до 7%. Центробежное распыление уран-молибденового слитка с содержанием молибдена в сплаве 10,5 мас.% позволяет получить равномерное содержание молибдена в исходном порошке. Порошок просеивают через сито с размером ячейки 160 мкм. Просеянный уран-молибденовый порошок с содержанием молибдена 10,25 мас.% выдерживают при температуре 500°C в течение 10 часов в вакуумной печи СШВЭ с вертикальной загрузкой (в среде аргона). Полученный порошок прессуют в цилиндрической матрице при давлении прессования 950 МПа без добавления связующего (пластификатора). Таблетки спекают в среде аргона (при содержании воды не более 80 ppm) при температуре (1125<sup>+10/-5</sup>)°C при изотермической выдержке 12 часов в печи СШВЭ (или XERION XVAC-2200). Нагрев до изотермической выдержки осуществляют в потоке аргона 1 л/мин со скоростью нагрева не более 5°C/мин с последующим охлаждением в статической атмосфере аргона со скоростью охлаждения (15-20)°C/мин. После этого проводят шлифование, сушку и отбраковку таблеток на соответствие техническим требованиям.

Пример 3 (по второму варианту исполнения). В качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с содержанием молибдена в сплаве 9,0 мас.%, полученный методом центробежного распыления из слитка этого же сплава, с обогащением по урану 235 до 7% и просеянный через сито с размером ячейки 160 мкм. Центробежное распыление уран-молибденового слитка с содержанием молибдена в сплаве 9,0 мас.% позволяет получить равномерное содержание молибдена в исходном порошке. В качестве пластификатора (связующего вещества) используют 8%-ный водный раствор поливинилового спирта с 1% глицерина (3% от массы от массы уран-молибденового сплава). Смешивание проводят в три стадии. На первой стадии смешивают все количество связующего и порошок уран-молибденового сплава в количестве до 10 мас.% до получения однородной смеси. На второй стадии полученную смесь смешивают с порошком уран-молибденового сплава в количестве до 40 мас.% до получения однородной смеси. На третьей стадии в смесь, полученную на второй стадии, вводят оставшееся количество порошка уран-молибденового сплава и смешивают до получения однородной смеси. Смешивание порошка проводят в смесителе типа "Турбула" в течение 20-30 минут. Подготовленный порошок прессуют в цилиндрической матрице при давлении прессования 850 МПа. Перед спеканием таблетки нагревают в атмосфере аргона при температуре от 300°C до 450°C в течение 4 часов для удаления связки. Таблетки спекают в среде аргона (с содержанием воды не более 80 ppm) при температуре (1125<sup>+10/-5</sup>)°C, при изотермической выдержке порядка 4 часа в печи СШВЭ с вертикальной загрузкой. Нагрев до изотермической выдержки осуществляют в потоке аргона 1 л/мин со скоростью нагрева не более 5°C/мин с охлаждением в статической атмосфере аргона со скоростью охлаждения (15-20)°C/мин. После этого проводят шлифование, сушку и отбраковку таблеток не соответствующих техническим требованиям.

Пример 4 (по второму варианту исполнения). В качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с содержанием молибдена в сплаве 10,5 мас.%, полученный методом центробежного распыления из слитка этого же сплава, с обогащением по урану 235 до 7% и просеянный через сито с размером ячейки 160 мкм. Центробежное распыление уран-молибденового слитка с содержанием молибдена в сплаве 10,5 мас.% позволяет получить равномерное содержание молибдена в исходном порошке. В качестве пластификатора (связующего вещества) используют 8% водный раствор поливинилового спирта с 1% глицерина (3% от массы от массы уран-молибденового сплава). Смешивание проводят в три стадии. На первой стадии смешивают все количество связующего и порошок уран-молибденового сплава в количестве до 10 мас.% до получения однородной смеси. На второй стадии полученную смесь смешивают с порошком уран-молибденового сплава в количестве до 40 мас.% до получения однородной смеси. На третьей стадии в смесь, полученную на второй стадии, вводят оставшееся количество порошка уран-молибденового сплава и смешивают до получения однородной смеси. Смешивание порошка проводят в смесителе типа "Турбула" в течение 20-30 минут. Подготовленный порошок прессуют в цилиндрической матрице при давлении прессования 950 МПа. Перед спеканием таблетки нагревают в среде аргона

при температуре от 300°C до 450°C в течение 2 часов для удаления связки. Таблетки спекают в среде аргона (с содержанием воды не более 80 ppm) при температуре  $(1125^{+10/-5})^{\circ}\text{C}$  при изотермической выдержке порядка 12 часов в печи СШВЭ с вертикальной загрузкой. Нагрев до изотермической выдержки осуществляют в потоке аргона 1 л/мин со скоростью нагрева не более 5°C/мин с охлаждением в статической атмосфере аргона со скоростью охлаждения  $(15-20)^{\circ}\text{C}/\text{мин}$ . После этого проводят шлифование, сушку и отбраковку таблеток не соответствующих техническим требованиям.

#### Промышленная применимость

На фигуре представлены уран-молибденовые таблетки после спекания и механической обработки.

Таким образом, предлагаемый способ, по сравнению с ранее известными, позволяет получать топливные таблетки из уран-молибденовых порошков, с обогащением по урану 235 до 7% и с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.% для тепловыделяющих элементов ядерных реакторов с повышенными эксплуатационными характеристиками.

#### ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ изготовления таблетированного топлива из уран-молибденовых порошков для тепловыделяющих элементов ядерного реактора, включающий подготовку порошка, прессование таблеток в матрице, спекание их в газообразной среде, шлифование, сушку, отбраковку таблеток, отличающийся тем, что спекание таблеток осуществляют в инертной среде, а в качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с обогащением по урану 235 до 7% и с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%.

2. Способ по п.1, отличающийся тем, что размер фракции уран-молибденового порошка составляет не более 160 мкм.

3. Способ по п.1, отличающийся тем, что перед прессованием таблеток в матрице уран-молибденовый порошок нагревают в среде аргона при температуре 500°C в течение 10-20 часов.

4. Способ по п.1, отличающийся тем, что прессование таблеток в матрице осуществляют усилием до 950 МПа.

5. Способ по п.1, отличающийся тем, что спекание таблеток проводят в среде аргона при температуре 1100-1155°C в течение 4-12 часов.

6. Способ изготовления таблетированного топлива из уран-молибденовых порошков для тепловыделяющих элементов ядерного реактора, включающий подготовку порошка, постадийное смешивание со связующим, прессование таблеток в матрице, термическое удаление связующего, спекание таблеток в газообразной среде, шлифование, сушку, отбраковку таблеток, отличающийся тем, что спекание таблеток осуществляют в инертной среде, а в качестве исходного порошка используют уран-молибденовый порошок с обогащением по урану 235 до 7% и с содержанием молибдена от 9,0 до 10,5 мас.%.

7. Способ по п.6, отличающийся тем, что размер фракции уран-молибденового порошка составляет не более 160 мкм.

8. Способ по п.6, отличающийся тем, что прессование таблеток в матрице осуществляют усилием до 950 МПа.

9. Способ по п.6, отличающийся тем, что термическое удаление связующего осуществляют путем нагревания таблеток в среде аргона при температуре от 300°C до 450°C в течение 2-4 часов.

10. Способ по п.6, отличающийся тем, что спекание таблеток проводят в среде аргона при температуре 1100-1155°C в течение 4-12 часов.

