



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0036748

(51)⁷ G21C 3/58

(13) B

(21) 1-2016-00944

(22) 21/11/2014

(86) PCT/RU2014/000882 21/11/2014

(87) WO 2015/080626 04/06/2015

(30) 2013152247 26/11/2013 RU

(45) 25/08/2023 425

(43) 27/03/2017 348A

(73) JOINT STOCK COMPANY "AKME-ENGINEERING" (RU)

Ul. Pyatnitskaya, 13, str. 1 Moscow, 115035, Russian

(72) KURINA Irina Semyonovna (RU); POPOV Vjacheslav Vasilyevich (RU);
RUMYANTSEV Vladimir Nikolaevich (RU); RUSANOV Alexander Evgenievich
(RU); ROGOV Stepan Sergeevich (RU); SHARIKPULOV Said Mirfaisovich (RU).

(74) Công ty Luật TNHH ANT (ANT LAWYERS COMPANY LIMITED)

(54) HẠT NHIÊN LIỆU HẠT NHÂN CÓ ĐỘ DẪN NHIỆT ĐƯỢC TĂNG CƯỜNG, VÀ PHƯƠNG PHÁP ĐIỀU CHẾ HẠT NÀY

(57) Sáng chế đề cập đến vật lý hạt nhân và cụ thể hơn sáng chế đề cập đến thành phần nhiên liệu hạt nhân và các bộ phận của nó, và cụ thể là hợp chất của thành phần nhiên liệu gồm rắn dựa vào uranium đioxit, với mục đích đưa ra đặc tính để sử dụng trong lò phản ứng với mục đích khác nhau. Kết quả bao gồm cấu trúc đặc biệt, đáng tin cậy hơn và hợp chất đơn giản của uranium đioxit mà không có chất phụ gia hạt nhiên liệu phức tạp, tiếp cận đặc tính của tinh thể đơn được tăng cường, vượt quá dữ liệu tham chiếu hiệu quả, dẫn nhiệt như là tăng nhiệt độ, và phương pháp sản xuất đơn giản. Kết quả đạt được là lỗ trong khoảng từ 1 đến 5 micron được phân bố dọc ngoại vi hạt trong cấu trúc nhỏ của mỗi nhóm kim loại trong hạt nhóm hạt nhân, và trong đó được đặt trong hạt là lỗ là kích thước nano chủ yếu. Ngoài ra, nhóm kim loại bao gồm trong khoảng từ 0,01 đến 1,0% theo khối lượng. Sáng chế cũng đề xuất phương pháp chuẩn bị hạt nhiên liệu hạt nhân, bao gồm kết tủa kim loại hydroid, trong hai giai đoạn, có mức pH khác nhau. Kim loại uranium được nấu chảy ở nhiệt độ vượt quá 1150°C, thiêu kết được thực hiện trong lượng pha lỏng không đáng kể ở mức nhiệt độ trong khoảng từ 1600 đến 2200°C trong môi trường hydrogen cho đến khi tạo ra uranium đioxit, cấu trúc bao gồm hợp chất kim loại phân tán trong đó. Quang phổ photon tia X được sử dụng để nhận dạng cấu trúc mới của hạt UO₂ và liên kết hóa học U-U bổ sung.

Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến ngành công nghiệp năng lượng hạt nhân và đặc biệt là thành phần nhiên liệu lò phản ứng và bộ phận của nó, và cụ thể sáng chế đề cập đến hợp chất của thành phần nhiên liệu gồm rắn dựa trên uranium đioxit nhằm mục đích và thể hiện các đặc tính để ứng dụng trong các lò phản ứng hạt nhân với mục đích khác nhau.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Hạt nhiên liệu hạt nhân có cấu trúc nano (trong phương án ưu tiên của sáng chế) được biết đến chứa bột thiêu kết và bột nén của hỗn hợp hạt của hợp chất U và kim cương nano đều nhau hiệu quả về kích thước và mật độ, ngoài ra, có thể chứa bột ép và bột thiêu kết của hỗn hợp hạt của hợp chất (U, Pu) và kim cương nano (Tài liệu sáng chế số 2467411RU, công bố ngày 20/11/2012)

Tuy nhiên, mặc dù sức bền và khả năng chịu nhiệt của hạt đã biết được nâng cao, nó có độ dẫn nhiệt thấp, hơn nữa, việc dẫn hơn 1% kim cương nano vào UO_2 hoặc $(\text{U,Pu})\text{O}_2$ dẫn đến giảm mật độ hiệu dụng của nhiên liệu hạt nhân và có thể gây ra tai nạn trong quá trình hoạt động của lò phản ứng vì kim cương phản ứng tạo thành than chỉ một cách tự phát và vỡ ra thành các mảnh nhỏ khi được làm nóng đến 2000°C mà không có tiếp xúc không khí.

Hạt nhiên liệu hạt nhân đốt cháy cao và phương pháp điều chế hạt này (trong phương án ưu tiên) được biết đến, ở đó hạt dựa vào uranium đioxit chứa nhôm và silic oxit phân bố đều trong thể tích hạt, trong đó, liên quan đến uranium, hàm lượng nhôm trong khoảng từ 0,005 đến 0,03 wt% trọng lượng mà silicon trong khoảng từ 0,003 đến 0,02% trọng lượng, tỉ lệ trọng lượng của nhôm với silicon trong khoảng từ 1,5 đến 4, kích thước hạt uranium đioxit thay đổi trong khoảng từ 20 đến $45\text{ }\mu\text{m}$. Ngoài ra, hạt có thể chứa gadolini oxit phân bố đều trong thể tích hạt như là dung dịch rắn với uranium đioxit, ở đó hàm lượng gadolini oxit so với uranium trong khoảng từ 0,3 đến 10,0% trọng lượng, hoặc chứa ebium oxit phân bố đều trong thể tích hạt như là dung dịch rắn

với uranium đioxit, trong đó hàm lượng ebium oxit so với uranium trong khoảng từ 0,3 đến 0,8% trọng lượng (Tài liệu sáng chế số 2376665RU. Công bố 20/12/2009).

Tuy nhiên, thực tế là hạt đã biết dẫn đến đốt cháy nhiên liệu tăng trong hoạt động lên đến 70 đến 100 MW·ngày/kg U, hạt không có cấu trúc, thành phần đơn giản, hoặc tăng độ dẫn nhiệt. Hơn nữa, hạt không nhằm để tải sau khi vận hành lò phản ứng. Phương pháp điều chế hạt đặc trưng có chi phí sản xuất cao.

Hạt nhiên liệu hạt nhân dựa vào uranium đioxit được biết đến chứa bột ép và bột thiêu kết của hỗn hợp uranium đioxit trong ebium oxit (Er_2O_3), hàm lượng trong nhiên liệu hạt nhân trong khoảng từ 0,46 đến 0,64% trọng lượng ebium tại lệ phần trăm trọng lượng không thực tế của U-235 trong nhiên liệu hạt nhân trong khoảng từ 2,6 đến 2,8% trọng lượng. Độ xốp của hỗn hợp nén và thiêu kết của uranium đioxit (UO_2) với oxit ebium không vượt quá 1% (Tài liệu sáng chế số 2157568RU, công bố ngày 10/10/2000).

Trong khi việc bổ sung ebium oxit làm tăng đốt cháy nhiên liệu, dẫn đến việc giảm độ dẫn nhiệt của nhiên liệu, do vậy, tăng gradien của nhiệt độ tỏa tròn của hạt và không góp phần ổn định tải sau khi vận hành lò phản ứng.

Hợp chất nhiên liệu 40% trọng lượng UO_2 + 60 % trọng lượng của MgO được biết đến có độ dẫn nhiệt 5,7 W/m·deg. ở nhiệt độ 1000°C (cao hơn khoảng 1,5 lần so với độ dẫn nhiệt thiết kế) (I.S. Kurina, V.N. Lopatinsky, N.P. Yermolayev, N.N. Shevchenko. Nghiên cứu và phát triển của MgO dựa trên nhiên liệu nén. – Báo cáo của Ủy ban kỹ thuật tổ chức tại Mát-xcơ-va, 1-4 October 1996. IAEA-TECDOC-970, 1997, p. 169-181).

Tuy nhiên, thành phần nhiên liệu đã biết của UO_2 + MgO bao gồm lượng đáng kể chất pha loãng MgO (60% trọng lượng). Không thể nạp hoàn toàn nhiên liệu với hợp chất như vậy vào lò phản ứng hiện tại. Để sử dụng trong các lò phản ứng nhiệt hoặc nhanh hiện có, nồng độ của ^{235}U trong nhiên liệu UO_2 + MgO phải được tăng lên. Điều này đòi hỏi chi phí rất lớn khi kết hợp với tăng nhiên liệu trong ^{235}U và điều chỉnh thiết bị cho quy trình sản xuất nhiên liệu dựa vào an toàn hạt nhân.

Hạt nhiên liệu hạt nhân được biết đến là hợp chất nền uranium đioxit với pha dẫn nhiệt đặt bên trong một cách riêng biệt. Hướng dòng nhiệt nhiên liệu trùng với hướng

pha dẫn nhiệt. Nhiệt được truyền bằng hạt đơn tinh thể của beryllium oxit hình kim hoặc cầu, kích thước 40 đến 200 μm , trong suốt dạng quang học, phân tán trong lưới uranium đioxit (Tài liệu sáng chế số 2481657. Công bố ngày 10/5/2013).

Trong khi hạt đã biết cho phép nâng cao độ dẫn nhiệt của vật liệu do cấu trúc hỗn hợp của nhiên liệu, tuy nhiên, nó không có cấu trúc đặc biệt có lỗ nano bên trong hạt và hợp chất kim loại của uranium.

Hạt nhiên liệu hạt nhân (theo phương án ưu tiên) được biết đến chứa bột nén và bột thiêu kết của hỗn hợp hạt của hợp chất uranium và cấu trúc cacbon khung đều về mật độ và kích thước hạt. Một phương án ưu tiên là hạt chia thành khu vực, trong đó khu vực hình trụ trung tâm của hạt có hàm lượng thể tích cấu trúc cacbon khung thấp hơn, trong đó khu vực hình khuyên bên ngoài có hàm lượng thể tích cao hơn. Trong trường hợp cụ thể, hàm lượng của cấu trúc cacbon khung (fuloren, ống nano cacbon, sợi nano cacbon) trong bột hỗn hợp trong khoảng từ 1,5 đến 12,5 vol.% cho hỗn hợp UO_2 và từ 1,2 đến 10,4 vol% cho hỗn hợp UN. (Tài liệu sáng chế số 2469427RU. Công bố ngày 10/12/2012).

Tuy nhiên, trong khi hạt đã biết đã nâng cao độ bền, độ chịu nhiệt, giảm xuất hiện và gia tăng vết nứt, giảm khả năng phá hủy, nhưng không cung cấp đủ độ dẫn nhiệt hiệu quả tại nhiệt độ đã tăng là do cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy và hợp chất đơn giản của uranium đioxit.

Hạt nhiên liệu hạt nhân của hợp chất mẫu được biết đến có 3% trọng lượng phân tử của hạt than đã sắp xếp hoặc silicon cacbua với độ dẫn nhiệt cao, cho phép nâng cao độ dẫn nhiệt. Trong giải pháp kỹ thuật đã biết, hạt hợp chất của nhiên liệu hạt nhân chứa hợp chất với lưới UO_2 và nhiều hạt tỉ lệ cao phân tán trong cùng một khối, ở đó các hạt này có tỉ lệ cao có độ dẫn nhiệt cao so với lưới UO_2 (Đơn sáng chế quốc tế số PCT/US2010/043307; Công bố quốc tế số WO/2011/014476, công bố ngày 03/02/2011).

Tuy nhiên, hạt có độ dẫn nhiệt cao trong hạt đã biết là sợi với chiều dài trong khoảng từ 0,25 đến 1,25 cm và chiều rộng trong khoảng từ 5 đến 15 μm (đường kính) bị phá hủy (vỡ, xoắn...) khi trộn và nén, vì vậy làm mất chức năng của việc nâng cao độ dẫn nhiệt của hạt. Ngoài ra, việc dẫn than chỉ đã sắp xếp hoặc silicon cacbua lên

đến 3% vào UO_2 dẫn đến khả năng uranium bị giảm của nhiên liệu hạt nhân, và bổ sung than chì có thể gây ra tình trạng khẩn cấp trong quá trình hoạt động.

Phương pháp sản xuất hạt nhiên liệu, cấu trúc nhiên liệu, và bột uranium ứng dụng đã biết. Trong số thanh nhiên liệu (13, 14, 15, 16, 17, 18, 19) cấu trúc nhiên liệu bao gồm, thanh nhiên liệu (16, 17, 18) được bổ sung chứa uranim oxit với tốc độ ngưng hơn 5% chứa oxit hợp chất Gd.

Oxit hợp chất Gd là oxit chứa gadolini và tốc một nguyên tố đất hiếm B hơn gaodlini và được biểu thị bằng công thức hóa học $\text{Al-XGdXO}_{2-0,5\text{X}}$ or $\text{Al-XGdXO}_{1.5}$. Các nguyên tố đất hiếm có thể là xeri (Ce), lantan (La), ebium (Er) (Đơn sáng chế quốc tế số PCT/JP2009/001708, Ngày nộp đơn quốc tế 4/14/2009; Công bố quốc tế số WO/2009/128250, Ngày công bố: 22/10/2009).

Phương pháp điều chế hợp chất nhiên liệu cho lò phản ứng neutron nhanh được biết đến bao gồm điều chế dung dịch vật liệu có thể tách ra được, kết tủa ammoniac, xử lý nhiệt bằng bột với oxit vật liệu có thể tách được bằng cách nén và thiêu kết hạt, trong đó dung dịch magie và sắt được bổ sung tại giai đoạn điều chế dung dịch, và sắt được khôi phục lại về trạng thái kim loại (Tài liệu sáng chế số 2098870RU, công bố 12/10/1997).

Tuy nhiên, phương pháp đã biết không tạo ra cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy hơn và hợp chất đơn giản của uranium đioxit của hạt nhiên liệu với độ dẫn nhiệt của nhiên liệu được tăng cường, cụ thể là dữ liệu tham chiếu ở trên, tại thời điểm tăng nhiệt độ.

Phương pháp chế tạo sản phẩm gốm được biết đến bao gồm hoạt động của kết tủa của kim loại cacbonat, hydroxit, oxalate... từ dung dịch xử lý nhiệt dư, nén và thiêu kết, trong đó giới hạn nhiệt độ thấp của xử lý nhiệt dư là nhiệt độ kết tinh lại, ví dụ thay đổi hình thái của sự thay đổi hình dạng hạt (Tài liệu sáng chế số 2135429 RU. Công bố 27/08/1999).

Tuy nhiên, phương pháp đã biết không tạo ra cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy và hợp chất đơn giản của urnium đioxit của hạt nhiên liệu với độ dẫn nhiệt của nhiên liệu tăng cường, cụ thể là dữ liệu tham chiếu trên vào thời điểm nhiệt độ tăng.

Phương pháp sản xuất hạt nhiên liệu hạt nhân dựa vào uranium đioxit được biết đến cùng với uranium hydrit đã phân tán nano với uranium đioxit đã phân tán cao ban đầu, thông qua trộn với các thành phần, sấy chân không hỗn hợp ở nhiệt độ 300 đến 330°C, ở đó uranium hydrit phân hủy thành kim loại, nén hạt từ sản phẩm sấy và thiêu kết chân không động ở nhiệt độ 1500 đến 1550°C (Tài liệu sáng chế số 2459289RU, công bố ngày 20/08/2012).

Tuy nhiên, phương pháp đã biết không tạo ra cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy hơn và hợp chất đơn giản của uranium đioxit kết quả là độ dẫn nhiệt tăng cường của nhiên liệu, cụ thể là trên dữ liệu tham chiếu, ở nhiệt độ tăng.

Việc biến đổi hạt nhiên liệu của uranium oxit đã biết bao gồm việc bổ sung chất phụ gia chứa amoniac với bột UO_2 tiêu chuẩn và nâng cao quy trình sản xuất, điều chế vật liệu gồm oxit, bao gồm phần dư chứa đồng thời các hạt với kích thước khác nhau, bao gồm hạt nano, tiếp theo đốt ở nhiệt độ tối ưu (Kurina I.S. Cải tiến công nghệ điều chế nhiên liệu Uranium Đioxit để cải thiện hiệu suất // Tài liệu về Hội thảo toàn Nga lần thứ nhất dành cho sinh viên đại học, sau đại học, nhà nghiên cứu trẻ trong các lĩnh vực hoạt động chuyên đề của vật liệu nano chức năng cho năng lượng Mạng lưới quốc gia về công nghệ nano. Moscow, Đại học Hạt nhân Nghiên cứu Quốc gia MEPhI, 2011. PP. 117-146).

Việc công bố mô tả cách tiếp cận chung để thay đổi các hạt nhiên liệu uranium đioxit sẽ không cho phép có được cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy của hạt nhiên liệu và hợp chất đơn giản của uranium đioxit với độ dẫn nhiệt của nhiên liệu đã tăng cường, cụ thể dữ liệu tham chiếu trên, ở nhiệt độ tăng mà không gia tăng cấu tạo.

Giải pháp kỹ thuật tương tự đã bộc lộ gần nhất là dựa vào thuộc tính của hạt nhiên liệu hạt nhân là hợp chất lưới uranium đioxit với pha BeO dẫn nhiệt đặt bên trong theo cách cụ thể. Hướng dòng nhiệt nhiên liệu trùng với hướng pha dẫn nhiệt. Nhiệt được truyền bằng hạt đơn tinh thể trong suốt quang học của beryllium oxit có dạng hình kim hoặc hình cầu phân tán trong mạng uranium đioxit, có kích thước trong khoảng từ 40 đến 200 μm , hàm lượng của nhiên liệu trong khoảng từ 1 đến 10% trọng lượng. Việc tính toán thể hiện việc tăng độ dẫn nhiệt ở 1000 °C và hàm lượng BeO là 3% trọng

lượng so với nhiên liệu ở dạng UO_2 sẽ nhỏ hơn 21% (Tài liệu sáng chế số 2481657, công bố ngày 10/05/2013).

Tuy nhiên, độ dẫn tăng cường trong hạt đã biết chỉ đạt được nếu dòng nhiệt chảy theo hướng pha dẫn nhiệt, đó là không thể đạt được trên thực tế trong quá trình điều chế (trộn, nén). Ngoài ra, việc điều chế pha dẫn nhiệt như vậy của beryllium oxit tinh thể đơn là phức tạp và quy trình ở quy mô lớn, tăng chi phí sản xuất nhiên liệu hạt nhân, trong khi đó đưa lượng lớn BeO vào UO_2 dẫn đến giảm công suất uranium của nhiên liệu. Hơn nữa, berili oxit là chất phản xạ và điều tiết neutron và sự bổ sung này sẽ làm thay đổi tính chất vật lý của lò phản ứng.

Các phương pháp sản xuất hạt nhiên liệu hạt nhân bậc lộ gần nhất là một phương pháp sản xuất sản phẩm gồm oxit với độ dẫn nhiệt được tăng cường, bao gồm hoạt động điều chế dung dịch axit chứa ít nhất một cation kim loại, bao gồm một sự phân hạch, sự lắng đọng muối hoặc hydroxit của ít nhất một kim loại từ dung dịch, xử lý nhiệt phần còn lại ở nhiệt độ ít nhất bằng với sự thay đổi hình thái của hình dạng hạt còn lại, ép và thiêu kết sản phẩm, ở đó, kim loại hydroxit được lắng với amoniac trong hai giai đoạn, ở đó giai đoạn thứ nhất giá trị pH là thấp hơn pH của sự kết tủa kim loại bằng ít nhất 0,5, và giai đoạn thứ hai pH trong khoảng từ 9,5 đến 10,5, muối ở dạng kim loại oxalate được lắng với dung dịch cô đặc của axit oxalic với dư lượng pháp của ít nhất 20%, trong đó hạt lớn của ít nhất 0,1 μm và 0,05 đến 2,0% trọng lượng của hạt nano với kích thước lên đến 30 nm được tạo ra trong phần dư (Tài liệu sáng chế số 2323912RU, công bố ngày 10/05/2008).

Tuy nhiên, phương pháp đã biết không tạo ra hạt nhiên liệu hạt nhân với cấu trúc đặc biệt đáng tin cậy hơn và hợp chất đơn giản của uranium dioxide với độ dẫn nhiệt của nhiên liệu tăng cường khi nhiệt độ tăng, cụ thể tham khảo dữ liệu tham chiếu ở trên.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Mục đích của sáng chế là phát triển cấu trúc đặc biệt có khả năng đáng tin cậy hơn và hợp chất đơn giản của uranium dioxide mà không có chất phụ gia không đồng nhất trong hạt nhiên liệu và phương pháp điều chế đơn giản của chất này, cả hai dẫn đến tiếp cận các thuộc tính đơn tinh thể và độ dẫn nhiệt của nhiên liệu đã tăng cường vào thời điểm nhiệt độ tăng, cụ thể là dữ liệu tham chiếu ở trên.

Việc thực hiện sáng chế mang lại những giải pháp kỹ thuật sau.

Hạt đã đề xuất và phương pháp điều chế là đơn giản và có chi phí thấp.

Hạt đã đề xuất có cấu trúc đơn giản đáng tin cậy cao và hợp chất đơn giản của uranium dioxit mà không có chất phụ gia không đồng nhất.

Hạt đã đề xuất được điều chế sử dụng phương pháp đã đề xuất là gần với thuộc tính đơn tinh thể và minh họa hầu hết không có độ xốp. Ngoài ra, nó cũng tăng cường độ dẫn nhiệt khi nhiệt độ tăng, cụ thể xem dữ liệu tham chiếu ở trên.

Hạt đã đề xuất đã tăng cường độ dẻo do tạo ra nhóm kim loại và cung cấp tải ổn định theo hoạt động của lò phản ứng.

Ngoài ra, phương pháp điều chế hạt có chi phí thấp, khi các điều kiện cho việc hình thành kim loại uranium được cung cấp.

Các đặc tính quan trọng dưới đây ảnh hưởng đến việc thu được kết quả kỹ thuật trên. Giải pháp với vấn đề này bao gồm hạt nhiên liệu hạt nhân với độ dẫn nhiệt tăng cường chứa cấu trúc của bột uranium dioxit đã nén và thiêu kết có cấu trúc tạo ra lỗ phân tán đều dọc ranh giới hạt và trong hạt, trong đó lỗ nano và nhóm kim loại của hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0 và 2^+ được đặt trong hạt và lỗ nano có kích thước trong khoảng từ 1 đến 200 nm và đạt ít nhất 50% tổng độ xốp, và nhóm kim loại của hỗn hợp hợp chất hóa học uranium với hóa trị là 0 và 2^+ được bao quanh bởi UO_2 , ngoài ra, tổng hàm lượng nhóm kim loại ở dạng hỗn hợp hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0 và 2^+ trong khoảng từ 0,01 đến 2% trọng lượng. Để tạo ra hạt nhiên liệu hạt nhân với độ dẫn nhiệt tăng cường, phương pháp điều chế được ứng dụng bao gồm phân hủy kim loại hydroid với pH trong hai giai đoạn, đốt, thiêu kết bột hỗn hợp uranium dioxit và ép, ứng dụng quang phổ photon tia X, với phân hủy được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục uranyl nitrat và dung dịch ammoniac vào bước đệm ở nhiệt độ $55-60 \pm 2^\circ C$ trong hai giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 6,5 đến 6,7, ở giai đoạn thứ hai, phân hủy cuối cùng polyuranat ammonia (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 9,0 đến 10,5, tiến hành đốt ở nhiệt độ trong khoảng từ 600 đến $680^\circ C$ cho đến khi giảm UO_2 , uranium kim loại được nấu chảy ở nhiệt độ trên $1150^\circ C$, tiến hành thiêu kết với lượng nhỏ pha lỏng trong môi trường

hydro-nitơ ở nhiệt độ trung bình trong khoảng từ 1600 đến 2200°C cho đến khi tạo ra nhóm kim loại.

Trong phương án ưu tiên với mức kéo dài phương pháp ứng dụng, sự phân hủy được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục dung dịch axit nitric với uranium và bổ sung kim loại và ammoniac vào bước đệm ở nhiệt độ $55-60\pm 2^{\circ}\text{C}$ trong hai giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 7,0 đến 7,2, ở giai đoạn thứ hai, phân hủy cuối cùng polyuranate ammonia (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 8,0 đến 8,5, trong đó crôm, thiếc, titan, nhôm... được sử dụng như là kim loại bổ sung.

Việc áp dụng công nghệ tiêu chuẩn là tin cậy để khuấy cơ học ammoniac chứa phụ gia với lượng từ 0,01 đến 0,5% vào bột UO_2 , trong đó được sử dụng ammoniac chứa chất phụ gia dưới đây: ammoniac cacbonat hoặc bicarbon nat, paraphenylenediamine, triazole...

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Sáng chế được minh họa bằng bản mô tả chi tiết, các ví dụ thực hiện và minh họa ở đó:

Fig.1 minh họa cấu trúc vi mô của hạt nhiên liệu hạt nhân đã đề xuất theo sáng chế

Fig.2 minh họa cấu trúc vi mô của hạt nhiên liệu hạt nhân đã đề xuất của uranium đioxit với kích thước lỗ trong khoảng từ 1 đến 200 nm lên đến 50% tổng độ xốp của hạt.

Fig.3 minh họa cấu trúc vi mô của hạt nhiên liệu hạt nhân uranium đioxit tiêu chuẩn.

Fig.4 minh họa điểm phụ thuộc nhiệt độ của độ dẫn nhiệt của hạt nhiên liệu uranium đioxit.

Fig.5 minh họa bảng phụ thuộc nhiệt độ của độ dẫn nhiệt của hạt uranium đioxit khác nhau.

Mô tả chi tiết sáng chế

Hạt nhiên liệu hạt nhân có độ dẫn nhiệt tăng cường (dưới đây gọi là “hạt”) có cấu trúc bột uranium đioxit đã nén và thiêu kết (Fig.1). Cấu trúc hạt được tạo thành từ các lỗ với kích thước 1 đến 5 μm được phân bố đều dọc ranh giới hạt và lỗ nano được đo

trong khoảng kích thước từ 1 đến 200nm được đặt trong hạt (Fig.2). Cái sau chiếm ít nhất là 50% tổng độ xốp. Nhóm kim loại của hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0 và 2^+ được bao quanh bởi UO_2 . Tổng hàm lượng của nhóm kim loại (nhóm) ở dạng hỗn hợp hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0 và 2^+ là trong khoảng 0,01 đến 2% trọng lượng và cation uranium liên kết hóa học (liên kết hóa học U-U)

Độ cứng tế vi của nhóm kim loại đó ít nhất thấp hơn 1,5 lần dữ liệu tham chiếu. Do nhóm kim loại, tỉ lệ O/U giảm xuống 1,996-1,999 bên trong hạt và tỉ lệ O/U là trong khoảng 2,000 đến 2,002 dọc ranh giới hạt do oxi hóa trong quá trình chứa trong không khí mở. Điều này nâng cao độ dẫn nhiệt của hạt. Fig.3 minh họa cấu trúc của hạt nhiên liệu hạt nhân uranium đioxit tiêu chuẩn mà không có nhóm kim loại để so sánh.

Độ dẫn nhiệt của hạt tăng vì nhiệt độ tăng trên 500-600°C và vượt quá dữ liệu thiết kế và tham chiếu bằng 1,5 đến 3 lần ở mức nhiệt độ 1000°C (Fig. 4, 5). Đó là do sau đây. Bản chất của sự phụ thuộc nhiệt độ của độ dẫn nhiệt đo bằng cách sử dụng phương pháp thông nhiệt trực truyền thống cho hạt UO_2 đã bộc lộ là rất giống với bản chất phụ thuộc nhiệt độ của độ dẫn nhiệt của đơn tinh thể UO_2 . Cho đơn tinh thể, độ dẫn nhiệt không phụ thuộc vào kích thước hoặc hướng. Ở nhiệt độ 700°C, độ dẫn nhiệt của đơn tinh thể là 60% cao hơn độ dẫn nhiệt trung bình của đa tinh thể thiếu kết UO_2 . Ở 1000°C, độ dẫn nhiệt đơn tinh thể là 5,9 W/m.deg, cao hơn 2,4 lần độ dẫn nhiệt của đa tinh thể thiếu kết của uranium đioxit.

Để tạo ra hạt nhiên liệu hạt nhân với độ dẫn nhiệt đã tăng cường, phương pháp được áp dụng bao gồm sự kết tủa kim loại hydroxit trong hai giai đoạn với pH, đốt, thiêu kết bột hỗn hợp uranium đioxit, nén và ứng dụng quang phổ photon tia X. Để thực hiện phương pháp, sự kết tủa được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục dung dịch uranyl nitrat và ammoniac với bộ đệm ở nhiệt độ $55-60 \pm 2^\circ\text{C}$ trong hai giai đoạn. Ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 6,5 đến 6,7, ở giai đoạn thứ hai, sự kết tủa cuối cùng polyuranat ammonia (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 9,0 đến 10,5. Việc đốt được thực hiện ở nhiệt độ trong khoảng từ 600 đến 680°C cho đến khi giảm UO_2 . Kim loại Uranium được nấu chảy ở nhiệt độ vượt quá 1150°C, và thiêu kết được thực hiện trong lượng pha lỏng không đáng kể ở nhiệt độ trong khoảng từ 1600 đến 2200°C trong môi trường hydro-nitơ cho đến khi nhóm kim loại

được tạo ra. Thiêu kết trong pha rắn tạo thành cấu trúc hạt và độ xốp cần thiết. Lỗ với kích thước từ 1 đến 5 μm được tạo ra dọc ranh giới hạt, và lỗ nano với kích thước ≤ 1 đến 200 nm được tạo ra bên trong hạt tạo thành ít nhất tổng 50% độ xốp. Tỷ lệ O/U giảm xuống từ 1,996-1,999 trong hệ thống $\text{UO}_2\text{-U}$. Uranium đioxit được tạo ra với nhóm kim loại đã phân tán của hợp chất hóa học uranium với hóa trị $0\text{-}2^+$ bao quanh bởi UO_2 . Cấu trúc mới của hạt UO_2 và liên kết hóa học U-U bổ sung được nhận ra bằng phương tiện của quang phổ photon tia X cho thấy lượng nhóm kim loại như vậy là từ 0,01 đến 2% trọng lượng trong hạt.

Trong phương án ưu tiên với mức đã mở rộng của ứng dụng phương pháp và điều chế chất xúc tác, sự kết tủa được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục dung dịch nitric axit với uranium và kim loại và ammoniac được bổ sung vào bước đậm ở nhiệt độ $55\text{-}60\pm 2^\circ\text{C}$ trong hai giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất, pH duy trì trong khoảng từ 7,0 đến 7,2 ở giai đoạn thứ hai, sự kết tủa lần cuối polyanat ammoniac (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 8,0 đến 8,5. Crom thiếc, titan, nhôm... được sử dụng như chất phụ gia kim loại. Chất phụ gia là chất xúc tác phân phối đến từng phần, trong khu vực gần chất phụ gia, giảm hạt nano uranium đioxit với kim loại uranium trong thiêu kết hạt.

Khi ứng dụng công nghệ tiêu chuẩn, chất phụ gia chứa ammoniac trong lượng từ 0,01 đến 0,5% được khuấy cơ học với bột UO_2 , trong đó được sử dụng sau đây như là chất phụ gia chứa ammoniac: ammoniac cacbonat hoặc bicarbonat, paraphenylenediamine, triazole...

Các ví dụ thực hiện sáng chế

Ví dụ 1

Hạt nhiên liệu hạt nhân có độ dẫn nhiệt tăng cường được điều chế như sau:

Quá trình lắng đọng được thực hiện bằng cách xả đồng thời dung dịch uranyl nitrat và amoniac vào chất đậm ở $55\text{-}60\pm 2^\circ\text{C}$ trong hai giai đoạn. Dung dịch amoni được cung cấp cho bát trầm tích amoni polyanat. Ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 6,5 đến 6,7, ở giai đoạn thứ hai, quá trình lắng đọng lần cuối polyanat ammoniac (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 9,0 đến 10,5. Việc đốt được thực hiện ở nhiệt độ trong khoảng từ 600 đến 680°C cho đến khi giảm

UO₂. Kim loại uranium được nấu chảy ở nhiệt độ vượt quá 1150°C, và thiêu kết được thực hiện trong lượng không đáng kể của pha lỏng ở nhiệt độ 1750°C trong môi trường hydrogen-nitơ cho đến khi nhóm kim loại được tạo ra. Việc thiêu kết trong pha lỏng tạo ra cấu trúc hạt và độ xốp cần thiết. Cấu trúc mới của hạt UO₂ và liên kết hóa học U-U bổ sung được phát hiện khi sử dụng quang phổ photon tia X. Cấu trúc hạt có lỗ được phân tán đều dọc ranh giới hạt và bên trong hạt. Lỗ có kích thước từ 1 đến 5 μm được phát hiện dọc ranh giới hạt, và lỗ nano từ ≤1 đến 200 nm được phát hiện bên trong hạt khi thực hiện ở ít nhất 50% tổng độ xốp. Ngoài ra, lưu ý rằng kích thước của lỗ nano là nhỏ hơn độ phân giải kính hiển vi, ví dụ nhỏ hơn 1nm. Đồng thời, hạt đã thiêu kết trong hệ thống UO₂-U có hợp chất pha UO₂ và tỉ lệ O/U là 2,002 ở ranh giới hạt và 1,998 bên trong hạt. Nhóm kim loại đã phân tán của hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0-2⁺ bao quanh bởi UO₂ được thực hiện trong cấu trúc uranium đioxit. Nhóm kim loại như vậy của hỗn hợp hợp chất hóa học uranium với hóa trị 0 và 2⁺ lượng từ 0,01 đến 2% trọng lượng hạt.

Ví dụ 2

Hạt nhiên liệu hạt nhân có độ dẫn nhiệt đã tăng cường được chuẩn bị như sau:

Kết tủa được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục dung dịch axit nitric với uranium và thêm kim loại và ammoniac vào bước đệm 55- -60±2°C trong hai giai đoạn. Ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 7,0 đến 7,2, ở giai đoạn thứ hai, sự kết tủa cuối cùng của polyurat ammoniac (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 8,0 đến 8,5. Crom được sử dụng như là chất phụ gia kim loại. Chất phụ gia đã đóng góp một phần, trong khu vực gần chất phụ gia, giảm hạt nano uranium đioxit với kim loại uranium trong thiêu kết hạt. Sau đó kim loại uranium được nấu chảy ở nhiệt độ vượt quá 1150°C, và thiêu kết được thực hiện với lượng không đáng kể của pha lỏng ở nhiệt độ 1750°C trong môi trường hydrogen-nitơ cho đến khi nhóm kim loại được hình thành. Thiêu kết trong pha lỏng tạo ra trong cấu trúc hạt và độ xốp cần thiết. Cấu trúc mới của hạt UO₂ và liên kết hóa học U-U bổ sung được phát hiện khi sử dụng quang phổ photon tia X. Cấu trúc hạt có lỗ được phân tán đều dọc ranh giới hạt và bên trong hạt. Các lỗ với kích thước từ 1 đến 5 μm được thực hiện dọc ranh giới hạt, và lỗ nano ≤1 đến 200 nm được phát hiện bên trong hạt để đạt được ít nhất 50% tổng độ xốp. Ngoài ra, lưu ý rằng kích thước lỗ nano là nhỏ hơn độ phân giải kính

hiển vi, ví dụ nhỏ hơn 1 nm. Đồng thời, hạt đã thiêu kết trong hệ thống $\text{UO}_2\text{-U}$ có hợp chất pha UO_2 và tỉ lệ O/U của 2,002 ở ranh giới hạt và 1,998 bên trong hạt. Nhóm kim loại bị phân tán của hợp chất hóa học uranium với hóa trị $0\text{-}2^+$ bao quanh bởi UO_2 được thực hiện trong cấu trúc uranium đioxit. Nhóm kim loại này của hỗn hợp hợp chất hóa học uranium có hóa trị 0 đến 2^+ chiếm 0,01 đến 2% trọng lượng hạt.

Ví dụ 3

Trong bột uranium đioxit được điều chế theo phương pháp tiêu chuẩn, 0,5% trọng lượng của 4-amino-1,2,4 bột triazole (triazole) được thêm bằng cách khuấy cơ học. Hạt được nén và thiêu kết trong môi trường hydrogen ở nhiệt độ 1750°C . Trong quá trình thiêu kết, ammoniac chứa ion tỏa tròn triazole phân hủy tạo ra hydro phát ra từ hydro để góp phần giảm khu vực liền kề của uranium đioxit trong thể tích hạt. Kết quả là, nhóm kim loại và hợp chất thiếu không khí được hình thành trong phần trong của hạt.

Sau đó, kim loại uranium được nấu chảy ở nhiệt độ vượt quá 1150°C , và thiêu kết được thực hiện trong pha lỏng không đáng kể ở nhiệt độ 1750°C trong môi trường hydrogen-nitơ trung bình cho đến khi nhóm kim loại được hình thành. Thiêu kết trong pha lỏng tạo ra cấu trúc hạt và độ xốp cần thiết. Cấu trúc mới của hạt UO_2 và liên kết hóa học U-U bổ sung được xác định khi sử dụng quang phổ photon tia X. Cấu trúc hạt có lỗ được phân tán đều dọc ranh giới hạt và bên trong hạt. Lỗ có kích thước từ 1 đến 5 μm được xác định dọc biên giới hạt, và lỗ nano từ ≤ 1 đến 200 nm được xác định bên trong hạt để đạt 50% tổng độ xốp. Ngoài ra, lưu ý rằng kích thước của lỗ nano là nhỏ hơn độ phân giải kính hiển vi, ví dụ nhỏ hơn 1 nm. Đồng thời, hạt đã thiêu kết trong hệ thống $\text{UO}_2\text{-U}$ có hợp chất pha UO_2 và tỉ lệ O/U của 2,001 ở ranh giới hạt và 1,999 bên trong hạt. Nhóm kim loại đã phân tán của hợp chất hóa học uranium với hóa trị $0\text{-}2^+$ được bao quanh bởi UO_2 được thực hiện trong cấu trúc uranium đioxit. Nhóm kim loại như này của hỗn hợp hợp chất hóa học uranium có hóa trị 0 và 2^+ chiếm 0,01-2% trọng lượng hạt.

Yêu cầu bảo hộ

1. Hạt nhiên liệu hạt nhân với độ dẫn nhiệt tăng cường bao gồm cấu trúc của bột uranium đioxit nén và thiêu kết, trong đó cấu trúc hạt được tạo thành từ các lỗ phân bố đều dọc ranh giới và bên trong hạt, tại đó, lỗ nano và nhóm kim loại của hợp chất hóa học uranium có hóa trị 0 và 2^+ được đặt bên trong hạt.
2. Hạt theo điểm 1, đặc trưng ở chỗ, lỗ nano có kích thước trong khoảng từ 1 đến 200nm và chiếm ít nhất 50% tổng độ xốp.
3. Hạt theo điểm 1, đặc trưng ở chỗ, nhóm kim loại của hỗn hợp hợp chất hóa học uranium có hóa trị 0 và 2^+ được bao quanh bởi UO_2 .
4. Hạt theo điểm 1, đặc trưng ở chỗ, tổng hàm lượng nhóm kim loại ở dạng hỗn hợp hợp chất hóa học uranium có hóa trị 0 và 2^+ trong khoảng từ 0,01 đến 2% trọng lượng.
5. Phương pháp sản xuất hạt nhiên liệu hạt nhân với độ dẫn nhiệt được tăng cường theo điểm 1 bao gồm kết tủa hydroxit kim loại với pH trong hai giai đoạn, đốt, thiêu kết bột hỗn hợp uranium đioxit và nén, ứng dụng quang phổ photon tia X, trong đó việc kết tủa được thực hiện bằng cách cô cạn đồng thời uranyl nitrat và dung dịch amoniac vào bộ đệm ở $55-60\pm 2^\circ\text{C}$ trong hai giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 6,5 đến 6,7, ở giai đoạn thứ hai, kết tủa lần cuối polyuranat amoniac (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 9,0 đến 10,5, việc đốt được thực hiện ở nhiệt độ trong khoảng từ 600 đến 680°C cho đến khi giảm UO_2 , kim loại uranium được nóng chảy ở nhiệt độ trên 1150°C , thiêu kết được thực hiện ở lượng nhỏ pha lỏng trong môi trường hydrogen-nitơ tại nhiệt độ trong khoảng từ 1600 đến 2200°C cho đến khi nhóm kim loại được tạo ra.
6. Phương pháp theo điểm 5, đặc trưng ở chỗ, kết tủa được thực hiện bằng cách cô cạn liên tục dung dịch axit nitric với uranium và được bổ sung kim loại và ammoniac vào bộ đệm $55-60\pm 2^\circ\text{C}$ trong hai giai đoạn: ở giai đoạn thứ nhất, pH được duy trì trong khoảng từ 7,0 đến 7,2, ở giai đoạn thứ hai, kết tủa cuối cùng polyuranat ammonia (PUA) được thực hiện ở mức pH trong khoảng từ 8,0 đến 8,5.
7. Phương pháp theo điểm 5, đặc trưng ở chỗ, chất phụ gia chứa amoniac trong lượng từ 0,01 đến 0,5% được khuấy vào bột UO_2 .

8. Phương pháp theo điểm 5, đặc trưng ở chỗ, phương pháp sử dụng chất phụ gia chứa amoniac: amoniac cacbonat hoặc bicacbonat, paraphenylenediamine, triazole.

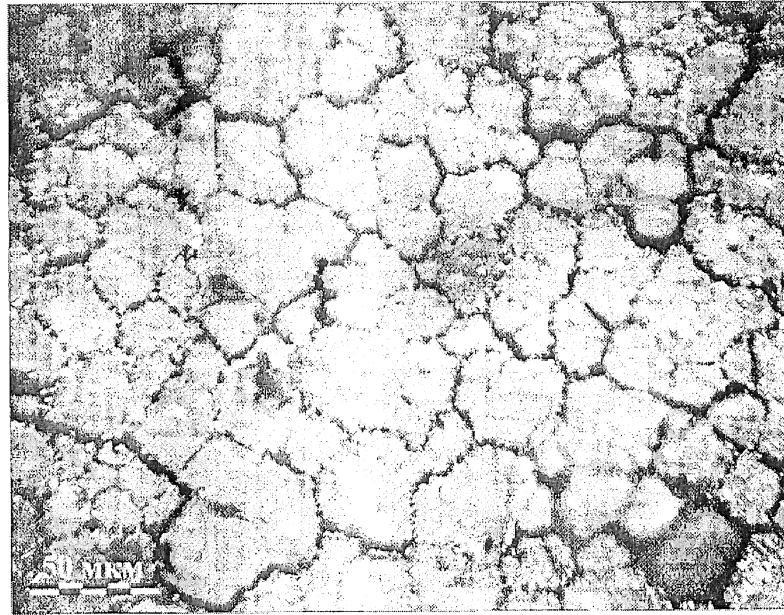


Fig. 1



Fig.2

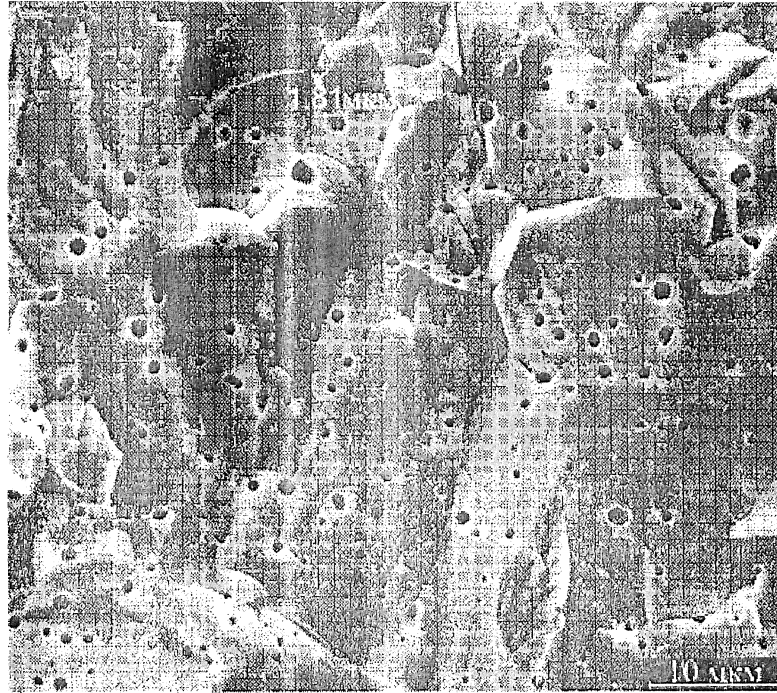


Fig. 3

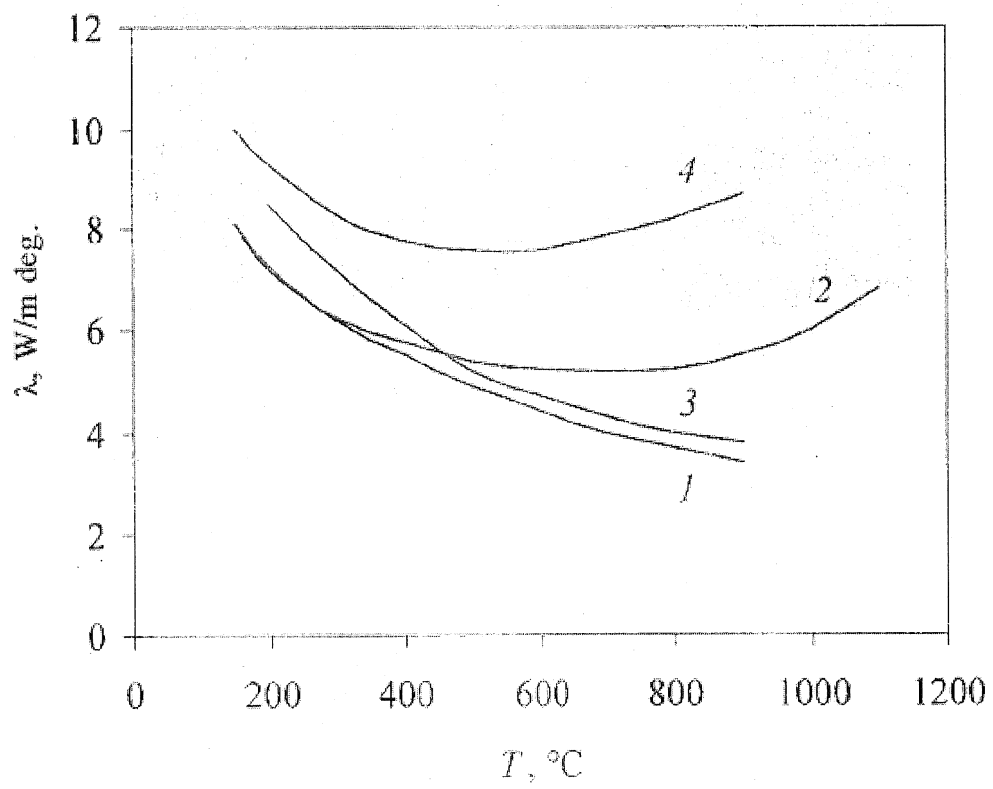


Fig.4

Nhiệt độ	Hệ số dẫn nhiệt, W/m.deg., viên UO_2			
	Dữ liệu tham chiếu		Tiêu chuẩn	Tiêu chuẩn
	Đa tinh	Đơn tinh		
150	8.1	8.1		10
200	7.3	7.2	8.5	9.3
300	6.2	6.25	7.2	8.3
400	5.5	5.75	6.1	7.8
500	4.9	5.4	5.2	7.6
600	4.4	5.25	4.7	7.6
700	4	5.2	4.3	7.85
800	3.7	5.25	4	8.2
900	3.4	5.5	3.8	8.7
1000		6		

*) theo J.H. Fink và M.C. Petry. Tính chất vật lý của Uranium Đioxit.
ANL/Re.-97/2.

**) theo V.B. Shevchenko, B.N. Sudarikov. Công nghệ Uranium.
Moscow: Gosatomizdat, 1961, 368 p.

Fig.5