



МЕТАЛЛУРГИЯ, МАТЕРИАЛТАНУ, ФИЗИКА
МЕТАЛЛУРГИЯ, МАТЕРИАЛОВЕДЕНИЕ, ФИЗИКА
METALLURGY, MATERIALS SCIENCE, PHYSICS

DOI 10.51885/1561-4212_2021_3_46

MPHTI 53.39.31

С.А. Абдулина¹, Ж.Ж. Жолдыбаева¹, Б.В. Сырнев¹, Т.М. Алдажаров²

¹Восточно-Казахстанский технический университет им. Д. Серикбаева,
г. Усть-Каменогорск, Казахстан

²АО Ульбинский металлургический завод, г. Усть-Каменогорск, Казахстан

E-mail: abdulina.saule@mail.ru*

E-mail: janara041997@mail.ru

E-mail: izusan@mail.ru

E-mail: satanastima@mail.ru

**МАТЕМАТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ ПРОГНОЗИРОВАНИЯ ПОКАЗАТЕЛЕЙ
КАЧЕСТВА ВЫПУСКАЕМЫХ В ПРОМЫШЛЕННОСТИ ТОПЛИВНЫХ ТАБЛЕТОК
ИЗ ДИОКСИДА УРАНА**

**УРАН ДИОКСИДІНЕН ӨНЕРКӘСІПТЕ ШЫҒАРЫЛАТЫН ОТЫН ТАБЛЕТКАЛАРЫНЫҢ
САПА КӨРСЕТКІШТЕРІН БОЛЖАУДЫҢ МАТЕМАТИКАЛЫҚ МОДЕЛІ**

**MATHEMATICAL MODEL FOR PREDICTING THE QUALITY INDICATORS OF FUEL
PELLETS MADE OF URANIUM DIOXIDE PRODUCED IN THE INDUSTRY**

Аннотация. В данной работе на основании комплекса выполненных исследований разработаны математические модели для прогнозирования показателей качества выпускаемых в промышленности таблеток. Полученные модели могут использоваться для расшивки партий порошка и получения партий с требуемыми показателями качества. Актуальность исследования обусловлена необходимостью повышения стабильности качества топливных таблеток для дальнейшего развития технических достижений и лучших показателей. Важной составляющей ядерного топливного цикла является изготовление топливных таблеток из порошков диоксида урана. От качества готовых таблеток зависит, прежде всего, работоспособность ТВЭЛов и реактора в целом.

Ключевые слова: Диоксид урана, топливные таблетки, термическая стабильность, математическая модель.

Аңдатпа. Бұл жұмыста орындалған зерттеулер жиынтығы негізінде отын таблеткалары өнеркәсібінде шығарылатын сапа көрсеткіштерін болжау үшін математикалық модельдер жасалды. Алынған модельдер ұнтақ партияларын тегістеу және қажетті сапа көрсеткіштері бар партияларды алу үшін пайдаланылуы мүмкін. Зерттеудің өзектілігі техникалық жетістіктер мен үздік көрсеткіштерді одан әрі дамыту үшін отын таблеткалары сапасының тұрақтылығын арттыру қажеттілігіне байланысты. Ядролық отын циклінің маңызды құрамдас бөлігі уран диоксиді ұнтақтарынан отын таблеткаларын жасау болып табылады. Дайын таблеткалардың сапасы, ең алдымен, ТВЭЛдер мен реактордың жұмысына байланысты.

Түйін сөздер: Уран диоксиді, отын таблеткалары, жылу тұрақтылығы, математикалық модель.

Abstract. In this paper, based on the complex of studies performed, mathematical models for predicting the quality indicators of tablets produced in the industry are developed. The resulting

models can be used for desoldering powder batches and obtaining batches with the required quality indicators. The relevance of the study is due to the need to increase the stability of the quality of fuel tablets for the further development of technical achievements and better indicators. An important component of the nuclear fuel cycle is the production of fuel tablets from uranium dioxide powders. First of all, the efficiency of fuel rods and the reactor as a whole depends on the quality of the finished tablets.

Keywords: *Uranium dioxide, fuel pellets, thermal stability, mathematical model*

Введение. Уран – особое богатство Казахстана. Казахстан – первый в мире по объемам добычи урана (около 24 тысяч тонн в 2015 году), второй по разведанным запасам (после Австралии). Казахстанский урановый концентрат обеспечивает около 40 % потребностей мирной атомной энергетики и поставляется практически во все страны мира, где эксплуатируется АЭС. Наш уран идет в США, Китай, Индию, Южную Корею, Японию, страны Евросоюза и Россию.

Уран – активный химический элемент. Он реагирует практически со всеми химическими элементами, кроме инертных газов. На воздухе уран покрывается оксидной пленкой, которая не предохраняет его от дальнейшего окисления. Порошкообразный металл пирофорен. Компактный металл при нагревании на воздухе горит [1-5].

Безопасность и эффективность работы атомных электростанций во многом зависят от качеств используемого топлива; оно должно быть максимально компактным и устойчивым к воздействию внешних факторов. Не случайно ядерное топливо чаще всего выпускается в виде керамических таблеток, которые укладывают в герметичную упаковку – тепловыделяющие элементы, удобные для транспортировки и погружения в активную зону реактора. Энергоемкость этого продукта впечатляет: одна топливная таблетка из диоксида урана массой 4,5 г выделяет энергию, эквивалентную сжиганию 500 м³ природного газа или 500 кг нефти. Технологическая схема получения таблеток диоксида урана: смешение, уплотнение, приготовление формовочной массы, грануляция, просев, прессование, спекание, шлифование. Однако в производстве неизбежно получение определенного количества брака и отходов. Это могут быть: ураносодержащие растворы, брак и отходы при производстве спеченных таблеток, отходы при шлифовании таблеток [6-7]. Бракованные топливные таблетки могут быть бракованы поверхностным дефектом, по плотности, трещинам, расслоением, сколам и т.д. [8].

При выработке критериев оценки качества порошка UO₂ следует помнить о необходимости получения таблеток с воспроизводимой плотностью в пределах 10,4-10,7 г/см³, с контролируемой усадкой и без дефектов микроструктуры. Эти требования становятся особо актуальными в условиях крупномасштабного производства с высокой степенью автоматизации и механизации. Указанные требования можно выполнить лишь при наличии порошка, обладающего определенной совокупностью свойств, изменяющихся в достаточно узких пределах. Стабильность свойств порошка UO₂ – неперемное условие стабильности свойств полученных из него таблеток [9-15].

Материалы и методы исследования. Объектом исследования являются топливные таблетки, получаемые из порошков диоксида урана. Метод исследования – проведение процессов формования порошков, спекания и шлифовки таблеток диоксида урана по регламентам, определяемым действующей технологической инструкцией уранового производства.

Методика работы состояла из следующих этапов исследований:

– отбор проб от штатных промышленных партий порошка диоксида урана, полученных по гидролизно-экстракционной технологии, для определения химических, физиче-

ских и технологических свойств (14 партий);

- проведение процессов формования порошков, спекания и шлифовки таблеток диоксида урана по регламентам, определяемым действующей технологической инструкцией уранового производства;

- определение химических, физических и технологических свойств порошков, формовок и спеченных таблеток (содержание примесей, текучесть, насыпная плотность, параметры микроструктуры, термическая стабильность, плотность, количество брака и др.) по штатным аккредитованным методикам;

- выбор параметров оптимизации и проведение корреляционного анализа для определения значимых технологических факторов, влияющих на эти параметры;

- проведение регрессионного анализа для разработки математических моделей для прогнозирования указанных параметров и использования результатов прогноза для корректировки процесса и шихтовки партий порошка;

- проведение сравнительного анализа прогнозируемых по математическим моделям и фактически полученных характеристик промышленной продукции [16-25].

При выработке критериев оценки качества порошка UO_2 следует помнить о необходимости получения таблеток с воспроизводимой плотностью в пределах 10,4-10,7 г/см³, с контролируемой усадкой и без дефектов микроструктуры. Эти требования становятся особо актуальными в условиях крупномасштабного производства с высокой степенью автоматизации и механизации. Указанные требования можно выполнить лишь при наличии порошка, обладающего определенной совокупностью свойств, изменяющихся в достаточно узких пределах. Стабильность свойств порошка UO_2 – неперенное условие стабильности свойств полученных из него таблеток [26-30].

Таблица 1. Результаты определения термической стабильности таблеток

Номер партии	Термическая стабильность, г/см ³					
	$\Delta\rho_{\min}$	$\Delta\rho_{\max}$	$\Delta\rho_{\text{ср}}$	σ	$\Delta\rho_{\text{ср}}$ дов менее 0,142	$\Delta\rho$ тол менее 0,153
XXX02	0,024	0,067	0,041	0,012	0,048	0,073
XXX03	0,030	0,048	0,040	0,006	0,044	0,057
XXX04	0,028	0,051	0,039	0,007	0,044	0,059
XXX05	0,026	0,048	0,033	0,006	0,037	0,050
XXX06	0,019	0,037	0,029	0,005	0,032	0,043
XXX07	0,021	0,047	0,031	0,007	0,036	0,051
XXX08	0,021	0,035	0,028	0,005	0,031	0,042
XXX09	0,021	0,039	0,028	0,006	0,032	0,045
XXX10	0,014	0,044	0,022	0,008	0,027	0,043
XXX11	0,006	0,034	0,025	0,008	0,030	0,046
XXX12	0,040	0,059	0,044	0,005	0,047	0,057
XXX13	0,024	0,053	0,040	0,007	0,044	0,059
XXX14	0,014	0,071	0,046	0,017	0,057	0,093
XXX15	0,018	0,034	0,026	0,006	0,030	0,042

Для установления статистической зависимости параметров оптимизации от факторов технологического регламента был проведен корреляционный анализ с использованием штатной программы Exel.

Параметры оптимизации: насыпная плотность (НП), плотность таблеток (ПТ), пористость таблеток (Пор), средний размер зерна микроструктуры таблеток (СРЗ), термичес-

кая стабильность таблеток (ТС), выход в годную продукцию (ВГ).

Факторы технологического регламента: содержание урана (U), фтора (F), алюминия (Al), углерода (C), суммы примесей Al, Ca, Mg, Si (Cum), кислородный коэффициент (KK), удельная поверхность (Уд), влажность (H₂O), порообразователь (АДКА).

Результаты расчетов коэффициентов корреляции (К) представлены в графической форме (рис. 1, 2). Значимыми принимаются коэффициенты, значение которых превышает величину 0,3.

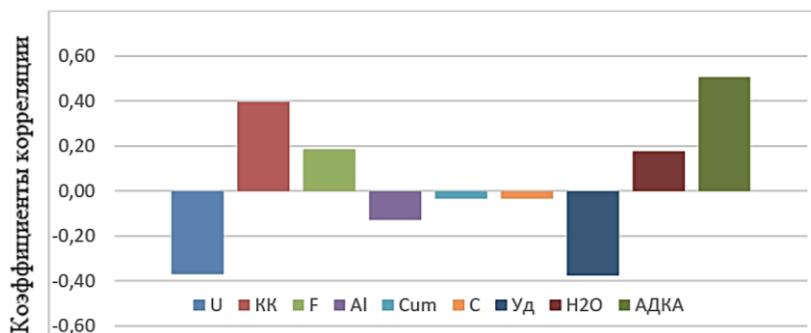


Рисунок 1. Коэффициенты корреляции насыпной плотности порошка

Анализ гистограммы (рис. 1) показывает, что насыпную плотность порошка диоксида урана повышает кислородный коэффициент ($K = 0,4$) и добавка порообразователя ($K = 0,51$), а снижает увеличение содержания урана ($K = -0,37$) и повышение удельной поверхности ($K = -0,38$).

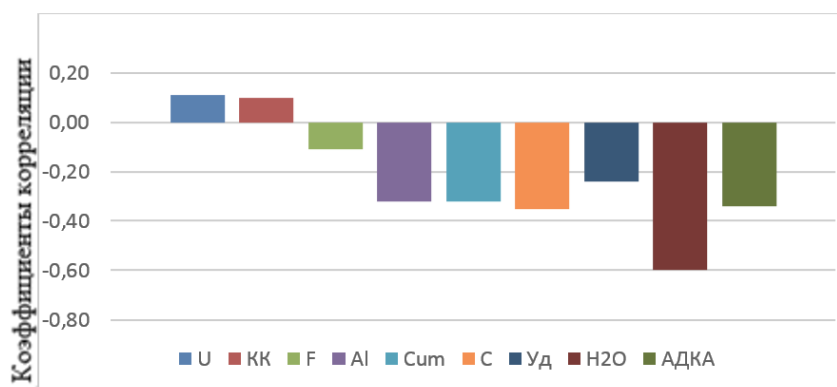


Рисунок 2. Коэффициенты корреляции «выхода в годное» таблеток

Анализ гистограммы показывает (рис. 2), что выход годной продукции (таблеток диоксида урана) снижается с повышением содержания алюминия ($K = -0,32$), суммы примесей ($K = -0,32$), углерода ($K = -0,35$), порообразователя ($K = -0,34$) и особенно при повышении влажности ($K = -0,6$).

Результаты и их обсуждения. По результатам корреляционного анализа определяются существенные технологические факторы (коэффициенты корреляции по абсолютной величине более 0,3), влияющие на параметры оптимизации (показатели качества продук-

ции). Полученные результаты используем для расчета математических моделей прогнозирования качества продукции – топливных таблеток.

Для проведения регрессионного анализа и получения математической модели делаем выборку значимых факторов (содержание алюминия, суммы примесей Al, Ca, Mg, Si, удельная поверхность влажность, АДКА и соответствующие им значения показателя выхода в годную продукцию) таблеток диоксида урана 14 партий.

С использованием программы Excel получена математическая модель:

$$ВГ = 163,1 - 0,3С_{um} - 0,2С - 2,9У_{д} - 144,9Н_2O + 7,8АДКА.$$

График расчетных значений термической стабильности таблеток имеет нормальное распределение (рис. 3) и адекватно отражает изменения ВГ таблеток от технологических факторов (коэффициент Фишера составляет 5,243447, коэффициент детерминации – R-квадрат = 0,7662) (рис. 3) погрешность прогноза не превышает 1,7 %.

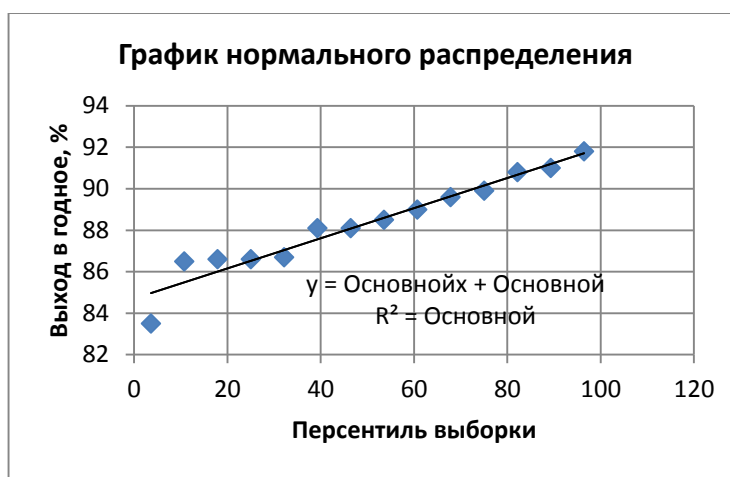


Рисунок 3. График нормального распределения фактических значений показателей «выхода в годное» таблеток

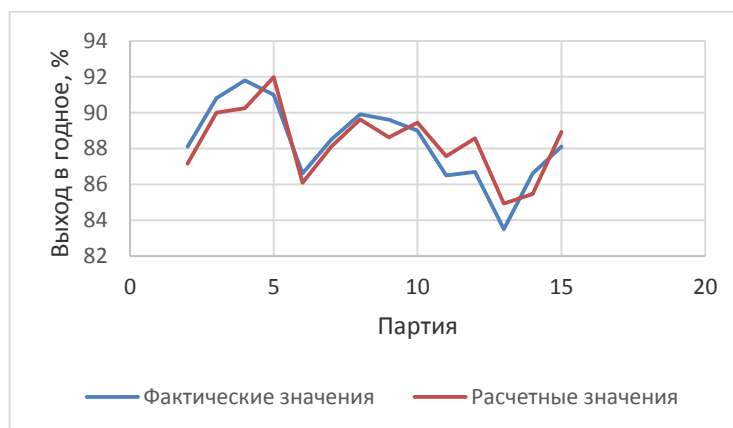


Рисунок 4. Сравнительный график расчетных и фактических значений «выхода в годное» таблеток

Заключение. Таким образом, разработанные модели могут использоваться для коррек-

тировки технологического регламента при производстве таблеток заданного качества, для расшихтовки партий порошка и получения партий с требуемыми показателями качества. Математические модели позволяют также оценивать технологичность исходного порошка и сравнивать различные технологии изготовления таблеток из него.

Список литературы

1. Порошковая металлургия. Материалы, технология, свойства, области применения: Справочник / Под ред. И.М. Федорченко. – Киев: Наукова Думка, 1985. – 624 с.
2. Галкин Н.П. Химия фтористых соединений урана. Химия урана. – М.: Наука, 1981. – 250 с.
3. Решетников Ф. Г., Бибилашвили Ю. К., Кушаковский В. И. Проблемы создания топлива для энергетических реакторов // Атомная энергетика. – 1978. – Т. 45, Вып 6. – С. 426-429.
4. Вайдинггер Х. С. Характеристика топлива реакторов LWR / Х. С. Вайдинггер // Атомная энергетика за рубежом. – 1997. – № 8. – С.23-26.
5. Кац Дж, Рабинович Е. Химия урана. – М.: Издательство иностр. лит. – 1954. – 490 с.
6. Харрингтон Ч., Рюэле А. Технология производства урана / Пер. с англ.; под ред. А. С. Займовского и Г.Л. Зверева. – М.: Госатомиздат, 1961. – 585 с.
7. Stech S., Tinka I., Vosely P. New type of WER – 440 fuel licenced for Dykonany NPP. In Proc.: International Topical Meeting TopFuel. - 2003. - Germany.
8. Новиков В.В. Повышение эффективности ТВЭЛов водоохлаждаемых реакторов // Атомная техника за рубежом. – 1987. – № 12.
9. Ю.К. Бибилашвили, А.В. Медведев, О.В. Милованов. Взаимосвязь исходных параметров топливной таблетки с ее свойствами и с основными эксплуатационными характеристиками ТВЭЛа. Разработка перспективных требований к топливным таблеткам / ВНИИНМ. – М. – 1997.
10. А.В. Маныч. Исследование микроструктуры топливных таблеток из UO₂. Уплотнение и распухание таблеток во время отжига на «доспекаемость», связь с исходной микроструктурой: отчет о НИР МБН. – 10 с. – 2003.
11. Андреев Г.Г., Пермьяков О.Е. Химическая кинетика гетерогенных некаталитических процессов в технологии ядерного топлива. – Томск: Изд-во ТПУ, 2000. – С. 35–39.
12. Андреев И.Ю., Головин В.Ф., Литвиненко В.Г., Овсейчук В.А., Шелудченко В.Г., Филоненко В.С. Комплексная технология переработки урановых руд агитационными и перколяционными методами // Горный журнал. – 2003. – №6. – С. 45-47.
13. Краткая химическая энциклопедия. – М., 1962. – Т. 2. – 776 с.
14. Судариков Б.Н., Раков Э.Г. Процессы и аппараты урановых производств. – М.: Машиностроение, 1969. – 383 с.
15. Forward F. A., Halpern I., Journal Canad. Mining Met. Transactions, t. LVI. – P. 255-258. – 1953.
16. Громов Б.В. Введение в химическую технологию урана. - М.: Атомиздат. - 1978.
17. Макаров В. К. Уран, методы его определения. – М.: Атомиздат. – 1960.
18. Займовский А.С., Калашников В.В., Головнин И.С. Тепловыделяющие элементы атомных реакторов. – М.: Атомиздат, 1966. – 520 с.
19. Тураев Н.С., Жерин И.И. Химия и технология урана – М.: Руды и металлы, 2006. – 396 с.
20. Шевченко В.Б., Судариков Б.Н. Технология урана. – М.: Госатомиздат, 1961. – 330 с.
21. Судариков Б.Н., Раков Э.Г. Процессы и аппараты урановых производств. – М.: Машиностроение, 1969. – 381 с.
22. Марков .К., Виноградов А.В., Елинсон С.В. и др. Уран, методы его определения – М.: Атомиздат, 1960. – 263 с.
23. Раков Э.Г., Хаустов С.В. Процессы и аппараты производства радиоактивных и редких металлов. – М.: Металлургия, 1993. – 384 с.
24. Ренейский А. Ядерная энергетика: состояние и перспективы// Бюллетень по атомной энергии, ЦНИИ управления, экономики и информации. – 2003. – № 6. – С. 37-42.
25. Муратов О., Тихонов М., Петров Э. Санкт-Петербург атомный // Бюллетень по атомной энергии. – 2003. – № 8. – С. 52–58.
26. Несмеянов А.Н. Радиохимия. – М.: Химия, 1978. – 559 с.
27. Тарханов А.В., Бойцов А.В. Уран: ресурсы, производство и потребности // Минеральные ресурсы России. – 2001. – № 4. – С. 18-24.
28. Андреев И.Ю., Головин В.Ф., Литвиненко В.Г., Овсейчук В.А., Шелудченко В.Г., Филоненко

- В.С. Комплексная технология переработки урановых руд агитационными и перколяционными методами // Горный журнал. – 2003. – № 6. – С. 45-47.
29. Торежогин М.У. О некоторых особенностях использования технологии подземного выщелачивания урана на месторождениях песчаникового типа в Казахстане и США // Сборник докладов научно-практ. конф. «Актуальные проблемы отработки урановых месторождений методом ПВ». – Алматы, 2000. – С. 147.
30. Каталог продукции // Ульбинский металлургический завод: Сертификат 15. 100 0731, ТУ 70 00 РК 38229886 – ЗАО – 2001 «Урана закись-окись. Технические условия».
31. Гагарин А.Е. Переработка ХКПУ на урановом производстве ОАО УМЗ // Сборник докладов научно-практ. конф. «Актуальные проблемы отработки урановых месторождений методом подземного выщелачивания». – Алматы, 2000. – С. 134-146.

References

1. Poroshkovaya metallurgiya. Materialy, tekhnologiya, svoystva, oblasti primeneniya: Spravochnik/Pod red. I.M. Fedorchenko. – Kiev: Naukova Dumka, 1985. – 624 s.
2. Galkin N.P. Himiya ftoristyh soedinenij urana. Himiya urana. – M.: Nauka, 1981. – 250 s.
3. Reshetnikov F. G., Bibilashvili YU. K., Kushakovskij V. I. Problemy sozdaniya topliva dlya energeticheskikh reaktorov // Atomnaya energetika. – 1978. – T.45, Vyp 6. - S.426-429.
4. Vajdinger H. S. Harakteristika topliva reaktorov LWR. / H. S. Vajdinger. – M.: Atomnaya energetika za rubezhom. – 1997. – № 8, – S. 23-26.
5. Kac Dzh, Rabinovich E. Himiya urana. – M.: Izdatel'stvo inostr. lit. – 1954. – 490 s.
6. Harrington CH., Ryuele A. Tekhnologiya proizvodstva urana : Per. s angl. / Pod red. A. S. Zajmovskogo i G. L. Zvereva. - M. : Gosatomizdat, 1961. – 585 s.
7. Stech S., Tinka I., Vosely P. New type of WER – 440 fuel licenced for Dykonany NPP. In Proc.: International Topical Meeting TopFuel. - 2003. - Germany.
8. Novikov V.V. Povyshenie effektivnosti TVELov vodoohlazhdaemyh reaktorov. // Atomnaya tekhnika za rubezhom. – 1987. - №12.
9. YU.K. Bibilashvili, A.V. Medvedev, O.V. Milovanov. Vzaimosvyaz' iskhodnyh parametrov toplivnoj tabletki s ee svoystvami i s osnovnymi ekspluatatsionnymi harakteristikami TVELa. Razrabotka perspektivnyh trebovanij k toplivnym tabletkam. VNIINM. M. – 1997.
10. A.V. Manych. Issledovanie mikrostruktury toplivnyh tabletok iz UO2. Uplotnenie i raspuhanie tabletok vo vremena otzhiga na «dospekaemost'», svyaz' s iskhodnoj mikrostrukturoj // Otchet o NIR MBN-10s. – 2003.
11. Andreev G.G., Permyakov O.E. Himicheskaya kinetika geterogennyh nekataliticheskikh processov v tekhnologii yadernogo topliva. – Tomsk: Izd-vo TPU, 2000. – S. 35-39.
12. Andreev I.YU., Golovin V.F., Litvinenko V.G., Ovsejchuk V.A., SHeludchenko V.G., Filonenko V.S. Kompleksnaya tekhnologiya pererabotki uranovyh rud agitatsionnymi i perkolyatsionnymi metodami // Gornyj zhurnal. – 2003. – № 6. – S. 45-47.
13. Kratkaya himicheskaya enciklopediya. – M., 1962. – T. 2. 776 s.
14. Sudarikov B.N., Rakov E.G. Processy i apparaty uranovyh proizvodstv. – M.: Mashinostroenie, 1969. 383 s.
15. Forward F. A., Halpern I., Journal Canad. Mining Met. Transactions, t. LVI, p. 255-258, 1953.
16. Gromov B.V. Vvedenie v himicheskuyu tekhnologiyu urana. - M.: Atomizdat. - 1978.
17. Makarov V. K. Uran, metody ego opredeleniya. - M.: Atomizdat. - 1960.
18. Zajmovskij A.S., Kalashnikov V.V., Golovnin I.S. Teplovydelyayushchie elementy atomnyh reaktorov. – M.: Atomizdat, 1966. – 520 s.
19. Turaev N.S., ZHerin I.I. Himiya i tekhnologiya urana – M.: Rudy i metally, 2006. – 396 s.
20. SHevchenko V.B., Sudarikov B.N. Tekhnologiya urana. – M.: Gosatomizdat, 1961. – 330 s.
21. Sudarikov B.N., Rakov E.G. Processy i apparaty uranovyh proizvodstv. – M.: Mashinostroenie, 1969. – 381 s.
22. Markov .K., Vinogradov A.V., Elinson S.V. i dr. Uran, metody ego opredeleniya – M.: Atomizdat, 1960. – 263 s.
23. Rakov E.G., Haustov S.V. Processy i apparaty proizvodstva radioaktivnyh i redkih metallov. – M.: Metallurgiya, 1993. – 384 s.
24. Renejskij A. YAdernaya energetika: sostoyanie i perspektivy// Byulleten' po atomnoj energii, CNII upravleniya, ekonomiki i informacii. – 2003. – №6. – С. 37-42.
25. Muratov O., Tihonov M., Petrov E. Sankt-Peterburg atomnyj // Byulleten' po atomnoj energii. –

2003. – №8. – С. 52–58.
26. Nesmeyanov A.N. Radiohimiya. – М.: Himiya, 1978. – 559 с.
27. Tarhanov A.V., Bojcov A.V. Uran: resursy, proizvodstvo ipotrebnosti // Mineral'nye resursy Rossii. – 2001. – №4. – С. 18-24.
28. Andreev I.YU., Golovin V.F., Litvinenko V.G., Ovsejchuk V.A., SHeludchenko V.G., Filonenko V.S. Kompleksnaya tekhnologiya pererabotki uranovykh rud agitacionnymi i perkolyacionnymi metodami // Gornyj zhurnal. – 2003. – № 6. – С. 45-47.
29. Torezhogin M.U. O nekotorykh osobennostyah ispol'zovaniya tekhnologii podzemnogo vyshchelachivaniya urana na mestorozhdeniyah peschanikovogo tipa v Kazahstane i SSHA // Sbornik dokladov nauchno-prakticheskoy konferencii Aktual'nye problemy otrabotki uranovykh mestorozhdenij metodom PV. – Almaty, 2000. – С. 147.
30. Katalog produkcii // Ul'binskij metallurgicheskij zavod. Sertifikat 15. 100 0731, TU 70 00 RK 38229886 – ZAO – 2001 "Urana zakis'-okis'. Tekhnicheskie usloviya".
31. Gagarin A.E. Pererabotka HKPU na uranovom proizvodstve OAO UMZ // Sbornik dokladov nauchno prakticheskoy konferencii Aktual'nye problemy otrabotki uranovykh mestorozhdenij metodom podzemnogo vyshchelachivaniya. – Almaty, 2000. – С. 134-146.