Физическое материаловедение

DOI: 10.18721/JPM.13412 УДК 544.3:544.45:661.487:621.039.1

ПОЛУЧЕНИЕ ФТОРИДА ВОДОРОДА ИЗ ГЕКСАФТОРИДА УРАНА В РЕЖИМЕ ГОРЕНИЯ

Д.С. Пашкевич¹, А.Р. Зимин¹, Ю.И. Алексеев², **Д.А.** Мухортов², П.С. Камбур¹, В.Б. Петров³, **Д.А.** Баженов⁴, П.А. Смолкин⁴, В.В. Капустин¹

 ¹ Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация;
 ² ООО «Новые химические продукты», Санкт-Петербург, Российская Федерация;
 ³ ФГУП «Российский научный центр "Прикладная химия"», Санкт-Петербург, Российская Федерация;
 ⁴ АО «Сибирский химический комбинат», г. Северск Томской области, Российская Федерация

Гексафторид урана, обедненного по изотопу U-235 (ОГФУ), является побочным продуктом изотопного обогащения урана, который направляют на долгосрочное хранение. Эффективные промышленные технологии, позволяющие вернуть в технологический цикл фтор, в настоящее время отсутствуют. Авторами статьи предложен метод переработки ОГФУ в пламени водорода и кислорода, на основе которого могут быть получены фторид водорода и оксиды урана. С помощью программного кода собственной разработки и комплекса АСТРА.4 выполнены термодинамические расчеты равновесных составов веществ в системе элементов U-F-H-O и показано, что, если количество атомов водорода превышает количество атомов фтора, то при температуре выше 1150 К основным фторсодержащим веществом в термодинамически равновесной смеси является фтористый водород, а основным урансодержащим — диоксид урана. Предложенный метод авторы экспериментально исследовали на созданной ими пилотной установке и показали, что состав его продуктов близок к термодинамически равновесному. Полученные результаты могут стать основой для промышленной технологии получения фторида водорода из ОГФУ.

Ключевые слова: обедненный гексафторид урана, диоксид урана, фтористый водород, горение

Ссылка при цитировании: Пашкевич Д.С., Зимин А.Р., Алексеев Ю.И., Мухортов Д.А., Камбур П.С., Петров В.Б., Баженов Д.А., Смолкин П.А., Капустин В.В. Получение фторида водорода из гексафторида урана в режиме горения // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2020. Т. 13. № 4. С. 149–161. DOI: 10.18721/JPM.13412

Статья открытого доступа, распространяемая по лицензии СС ВУ-NC 4.0 (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/)

HYDROGEN FLUORIDE OBTAINING FROM URANIUM HEXAFLUORIDE IN THE COMBUSTION MODE

D.S. Pashkevich¹, A.R. Zimin¹, Yu.I. Alexeev², D.A. Mukhortov², P.S. Kambur¹, V.B. Petrov³, D.A. Bazhenov⁴, P.A. Smolkin⁴, V.V. Kapustin¹

 ¹ Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russian Federation;
 ² LLC "New Chemical Products", St. Petersburg, Russian Federation; ³ Russian Scientific Center "Applied Chemistry", St. Petersburg, Russian Federation;
 ⁴ JSC "Siberian Chemical Plant", Seversk, Tomsk region, Russian Federation

Currently, there are no effective industrial technologies to return fluorine into a technological cycle. The authors have proposed a method for processing uranium hexafluoride depleted in the U-235 (DUHF) isotope in a hydrogen-oxygen flame that can be used as a basis for obtaining hydrogen fluoride and uranium oxides. Using own devising program code and complex ASTRA.4, performed thermodynamic calculations in the U-F-H-O elements system and it was shown that if the number of hydrogen atoms exceeded the number of fluorine atoms, then at temperatures above 1150 K, the only fluorine-containing substance in the thermodynamically equilibrium mixture was HF, while the main uranium-containing was UO_2 . The proposed method was experimentally investigated at a pilot plant and it was shown that the composition of its products was close to thermodynamic equilibrium. The results can become the basis for industrial technology of the hydrogen fluoride production from DUHF.

Keywords: depleted uranium hexafluoride, uranium dioxide, hydrogen fluoride, combustion

Citation: Pashkevich D.S., Zimin A.R., Alexeev Yu.I., Mukhortov D.A., Kambur P.S., Petrov V.B., Bazhenov D.A., Smolkin P.A., Kapustin V.V., Hydrogen fluoride obtaining from uranium hexafluoride in the combustion mode, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 13 (4) (2020) 149–161. DOI: 10.18721/JPM.13412

This is an open access article under the CC BY-NC 4.0 license (https://creativecommons.org/ licenses/by-nc/4.0/)

Введение

В результате изотопного разделения природного урана образуется побочный продукт – гексафторид урана, обедненный по изотопу ²³⁵U (ОГФУ). Гексафторид урана относится к веществам первого класса опасности, поэтому его накопление и хранение представляет собой экологическую угрозу. В то же время ОГФУ можно рассматривать как источник ядерно-чистого урана, обедненного по ²³⁵U, который целесообразно использовать для производства МОХ-топлива (англ. Mixed-Oxide fuel) для реакторов на быстрых нейтронах, а также фтора. В настоящее время ОГФУ хранят на обогатительных предприятиях Государственной корпорации по атомной энергии «Росатом».

Разработанные в России методы переработки ОГФУ обладают рядом серьезных недостатков, поэтому не нашли коммерческого применения [1–4].

На текущий момент известна лишь одна промышленная технология переработки ОГФУ — двустадийный гидролиз с получением водного раствора фторида водорода и октаоксида триурана, разработанный французской компанией "Orano" [5, 6]:

$$UF_{6aas} + 2H_2O_{aas} \rightarrow UO_2F_{2sol} + 4HF_{aas};$$
 (1)

$$3UO_{2}F_{2sol} + 3H_{2}O_{gas} + H_{2gas} \rightarrow$$

$$\rightarrow U_{3}O_{8sol} + 6HF_{aas} + H_{2}O_{aas}.$$
 (2)

Для полной регенерации фтора этим способом используют избыток воды, и основными фторсодержащими продуктами выступают фторид водорода и его азеотропный водный 40%-й раствор, что не позволяет замкнуть ядерный топливный цикл по фтору.

В России данную технологию использует АО «Электрохимический завод» (ЭХЗ) на установке W-ЭХЗ. Стоит отметить, что затраты на производство фторида водорода на указанной установке превышают таковые на производство фторида водорода традиционным методом (сернокислотное разложение высококачественного флюорита), поэтому эксплуатация установки имеет экологическую направленность [7].

Авторами данной статьи предложен способ регенерации фтора в виде фторида водорода из ОГФУ его обработкой в пламени водородсодержащего топлива и кислородсодержащего окислителя, например,

$$UF_{6 gas} + 3H_{2 gas} + O_{2 gas} \rightarrow$$

$$\rightarrow UO_{2 sal} + 6HF_{gas} - 583 \kappa Дж.$$
(3)

Расчетным путем показано, что процесс (3) термодинамически не запрещен, его тепловой эффект таков, что адиабатическая температура продуктов может составить величину около 2500 К, т. е. возможно протекание процесса в режиме горения. Также расчетами показано, что в системе элементов U-F-H-O, когда количество атомов водорода превышает количество атомов фтора, при температуре выше 1150 К в термодинамически равновесной смеси основным фторсодержащим веществом является фторид водорода, а основными урансодержащими - оксиды урана. Эти выводы подтверждены экспериментами на созданной нами пилотной установке.

Термодинамическое исследование процессов гидролиза фторидов урана

Согласно данным монографии [8], фто-

рид водорода может быть получен из фторидов урана гидролизом:

$$3UO_{2}F_{2sol} + 3H_{2}O_{gas} \rightarrow$$

$$\rightarrow U_{3}O_{8sol} + 6HF_{gas} + 0,5O_{2gas}, \qquad (4)$$

$$UF_{4\,sol} + 2H_2O_{gas} \rightarrow UO_{2sol} + 4HF_{gas}, \quad (5)$$

$$UF_{6\,gas} + 3H_2O_{gas} \rightarrow$$

$$\rightarrow UO_{2sol} + 6HF_{gas} + 0,5O_{2gas}.$$
(6)

Для оценки диапазона температуры, в котором целесообразно проводить процессы (1), (2) и (4) – (6), были рассчитаны значения изменения энергии Гиббса ΔG в зависимости от температуры *T* (рис. 1).

Из анализа данных рис. 1 следует, что для достижения высокой степени регенерации фтора из гексафторида урана без избытка воды, необходимо проводить его гидролиз при температуре свыше 1150 К.

Такую температуру можно получить, если обрабатывать ГФУ в пламени водородсодержащего топлива и кислородсодержащего окислителя:



Рис. 1. Изменения энергии Гиббса для реакций гидролиза фторидов урана в зависимости от температуры (номера кривых соответствуют номерам реакций)

$$UF_{6 sol} + x_1 C_m H_n O_k N_{l gas} + x_2 O_{2 gas} \rightarrow$$

$$\Rightarrow UO_{2 sol} + 6HF_{gas} + y_1 CO_{2 gas} + y_1 N_2 - Q,$$
(7)

где $C_m H_n O_k N_l$ – летучее водородсодержащее вещество, $n > 0, m \ge 0, k \ge 0, l \ge 0; nx_1 \ge 6, 2x_2 > 2, Q \approx 10^2 - 10^3 кДж, T > 10^3 K.$

Количество топлива и окислителя выбирают так, чтобы фтор был полностью регенерирован в виде фтористого водорода без образования воды, а основным урансодержащим веществом был бы диоксид урана.

Следует отметить, что в предложенном авторами методе тепло в зону реакции подводят не от стенки реактора, а в результате химического тепловыделения, поэтому температура стенок реактора может быть на уровне 100 °C.

При использовании водорода в качестве водородсодержащего топлива (реакция (3)), адиабатическая температура продуктов, а также температура с учетом поправки на лучистый теплообмен [9], рассчитанная на основе закона Кирхгофа, составляют 2540 К и 1670 К соответственно. Таким образом, имеется возможность регенерировать фтор из ОГФУ в виде фторида водорода без избытка воды по схеме (3) в режиме горения.

Термодинамически равновесный состав веществ в системе элементов U-F-H-O

Расчет термодинамически равновесного состава веществ в системе элементов U-F-H-O осуществляли на основе метода минимизации энергии Гиббса для смеси веществ, предполагая, что наиболее стабильными соединениями являются диоксид урана, тетрафторид урана, дифторид-диоксид урана, фтористый водород и вода [10, 11]:

$$x_{1}UF_{6 gas} + x_{2}H_{2 gas} + x_{3}O_{2 gas} \rightarrow$$

$$\rightarrow y_{1}UO_{2 sol} + y_{2}UF_{4 sol/liq} +$$

$$+ y_{3}UO_{2}F_{2 sol/liq} + y_{4}HF_{gas} + y_{5}H_{2}O_{gas},$$

(8)

где x_i, y_i – стехиометрические коэффициенты.

Верификация модели была выполнена путем сравнения полученных результатов с

расчетными, для которых использовали программный пакет АСТРА.4. В основе последнего лежит метод расчета термодинамически равновесного состава с поиском максимума энтропии [11, 12]. Результаты расчета представлены в табл. 1. Расхождение результатов расчета методами минимизации энергии Гиббса и максимизации энтропии при температуре выше 1150 К составляет менее 20%, при температуре выше 1150 К. Это расхождение, вероятно, связано с различием значений термодинамических функций рассматриваемых веществ в использованных справочниках. Так, например, в справочнике [10], из которого брали данные при расчете по методу минимизации энергии Гиббса, значение стандартной энтальпии образования для UF составляет -1854 кДж/моль, а значение того же параметра в справочном издании [11], который использовали при расчетах в программном комплексе АСТРА.4, составляло -1920 кДж/моль. Расхождения в несколько процентов наблюдаются и по другим параметрам (теплоемкость, стандартная энтропия образования), что и приводит к 20%-му отличию для диоксида урана и 6%-му для фтористого водорода. Таким образом, разработанная модель пригодна для расчета термодинамически равновесного состава.

Из результатов, представленных в табл. 1, следует, что основным фторсодержащим веществом в термодинамически равновесной смеси при температуре свыше 1100 К является фторид водорода НF, а основным урансодержащим веществом — диоксид урана UO₂. Содержание фторидов урана составляет менее 5%, а при температуре выше 1700 К — менее 0,5%; содержание воды при температуре свыше 1300 К — примерно единицы процентов.

Таким образом, оказывается, что практически полная регенерация фтора из ОГФУ по реакции (3) термодинамически не запрещена.

Результаты термодинамического анализа позволяют сделать вывод о целесообразности экспериментального исследования процесса получения фторида водорода при взаимодействии гексафторида урана с водородом и кислородом в режиме горения.

Таблица 1

<i>Т</i> , К	Концентрация соединения, С, мол.%										
	UO ₂		UF ₄		$\frac{\mathrm{UO}_{2}\mathrm{F}_{2}}{\mathrm{UOF}_{3}}$		H ₂ O		HF		
	G	Астра	G	Астра	G	Астра	G	Астра	G	Астра	
700	< 0,1	< 0,1	20,0	19,5	< 0,1	< 0,1	40,0	39,1	40,0	40,9	
900	1,0	< 0,1	19,0	17,8	< 0,1	< 0,1	40,0	35,1	40,0	47,1	
1100	17,0	10,3	0,9	4,1	< 0,1	< 0,1	1,5	8,1	80,6	77,6	
1300	16,9	13,8	0,8	< 0,1	< 0,1	< 0,1	2,7	1,9	79,6	84,3	
1500	16,7	13,4	0,3	0,6	< 0,1	< 0,1	3,5	2,2	79,5	83,8	
1700	16,3	12,9	0,3	0,7	< 0,1	0,8	3,9	2,7	79,5	82,9	

Расчетный термодинамически равновесный состав веществ в системе элементов 1U-6F-6H-2O

П р и м е ч а н и е. Расчеты проведены с помощью программного кода собственной разработки (G) и программного комплекса АСТРА.4.

Экспериментальное исследование взаимодействия гексафторида урана с водородом и кислородом в режиме горения

Для экспериментального исследования состава продуктов процесса переработки ОГФУ в пламени водородсодержащего топлива и кислородсодержащего окислителя, была создана пилотная установка.

Установка (рис. 2) состоит из четырех основных функциональных узлов.

Узел подготовки и подачи исходных газообразных веществ *1* предназначен для подачи в реактор ОГФУ, водорода, аммиака, фтора и азота. Аммиак и фтор использовали в качестве самовоспламеняющийся пары для инициирования горения основного факела. Управление расходами всех газов осуществляли с помощью регуляторов расхода фирмы «Bronkhorst».

Главным элементом реакторного узла 2 являлся реактор типа «туннельная горелка» с рубашкой охлаждения, куда подавали воду с температурой около 90 °С для исключения конденсации фтористого водорода. Длина и диаметр реактора составляли 2650 и 142 мм соответственно. Реактор состоял из двух цилиндрических секций длиной 1,00 м и одной

конусной секции длиной 0,65 м. Между секциями в реакторе были смонтированы измерительные фланцы, в которых установлены хромель-алюмелевые термопары в защитных чехлах, а также датчики давления. Подачу компонентов в реактор осуществляли с помощью двух форсунок, установленных в форсуночном блоке SB1.

Узел разделения твердой и газовой фаз *3* состоял из сборников твердой фазы C1, C2, C3, теплообменника T5, в котором поток охлаждали до температуры 120 °C, циклонного аппарата CA и металлокерамического фильтра F1, в котором отделяли частицы с размером более 0,15 мкм.

Узел конденсации фторида водорода и воды 4 представлял собой теплообменник типа «труба в трубе», где поддерживали температуру – 40 °C.

На пилотной установке исследовали процесс взаимодействия ОГФУ с водородом и кислородом в режиме горения при соотношении компонентов, близком к приведенному в реакции (3). В опытах меняли расход ОГФУ от 1 до 7 г/с, что соответствовало скорости смеси исходных веществ в реакторе 0,02 - 0,20 м/с при температуре 90 °С.





1 – узел подготовки и подачи исходных газообразных веществ, 2 – реакторный узел, 3 – узел разделения твердой и газовой фаз, 4 – узел конденсации фторида водорода и воды; SB1 – форсуночный блок, TR1 – TR6 – термопары, C1 – C4 – сборники твердой фазы, T4 – T7 – теплообменники, CA – циклонный аппарат, F1 – металлокерамический фильтр



Рис. 3. Зависимость температуры спая термопары TR2 (см. рис. 2) в реакторе от времени. Отмечены стадии процесса: I – подача NH₃ и F₂, II – подача H₂ и O₂, III – подача ОГФУ, IV – прекращение подачи компонентов. Расходы газов, г/с: F₂ – 0,010, NH₃ – 0,014, ОГФУ – 1,50, H₂ – 0,05, O₂ – 0,27

С помощью термопар наблюдали за формированием фронта пламени. Характерная термограмма опыта представлена на рис. 3. Показана зависимость температуры спая термопары TR2 (первый измерительный фланец, 40 мм от оси) в реакторе от времени. На рисунке четко виден рост температуры при подаче аммиака и фтора (самовоспламенение), водорода и кислорода (горение кислород-водородного пламени) и ОГФУ – изменения температуры составляют сотни градусов. Таким образом, было установлено, что трехкомпонентный факел ОГФУ-водородкислород надежно формируется и стабильно горит при инициировании фтор-аммиачным пламенем при расходе ОГФУ от 1 до 7 г/с и соотношении компонентов, близком к представленному в реакции (3).

На рис. 4 приведены термограммы термопар, установленных в трех измерительных фланцах, для расходов ОГФУ, близких к минимальному и максимальному.

На основании данных, приведенных на рис. 3 и 4, можно сделать вывод, что длина факела в реакторе не превышала 1 м в исследованном диапазоне изменения расходов. Основным урансодержащим продуктом процесса (3) являлся порошок оксидов урана, главным образом диоксида урана и октаоксида триурана. Более 97 % порошка находилось в гравитационном сборнике С1.

Содержание фтора, ковалентно связанного с ураном и определяемое с помощью инструментальных методов — рентгенофазного анализа и Фурье-ИК-спектроскопии, изменялось от 0,1 до 3%.

Жидкая фаза продуктов реакции (3) представляла собой плавиковую кислоту, с концентрацией фторида водорода более 90 масс.%.

Степень регенерации фтора из ОГФУ рассчитывали по формуле



Рис. 4. Зависимости температуры спаев термопар от времени в реакторе для двух вариантов расхода компонентов, г/с: ОГФУ – 1,5, $H_2 - 0,04$, $O_2 - 0,16$ (*a*) и ОГФУ – 7,0, $H_2 - 0,14$, $O_2 - 0,76$ (*b*); расход остальных компонентов одинаков, г/с: $F_2 - 0,010$, $NH_3 - 0,014$. Приведены данные от термопар, установленных на верхнем (*I*), среднем (*2*) и нижнем (*3*) фланцах

$$R_{\rm F} = \left(1 - \frac{1}{6} \sum_{i} C_{\rm UF_i} N_{\rm UF_i}\right) \cdot 100\%, \qquad (9)$$

где $C_{\rm UF}$ — мольная концентрация фторидов и оксифторидов урана, $N_{\rm UF}$ — количество атомов фтора во фторидах и оксифторидах урана.

Значение параметра $R_{\rm F}$ достигало 99 %.

В табл. 2 представлены результаты опытов по определению концентрации ковалентно связанного фтора, степени регенерации фтора и концентрации фторида водорода в плавиковой кислоте в зависимости от расхода ОГФУ и мольного соотношения исходных компонентов.

В табл. 3 представлен состав твердых продуктов процесса переработки ОГФУ, количество фторида водорода, воды и водорода, отнесенные к 1 молю ОГФУ; все величины рассчитаны по составу твердых продуктов.

На основе экспериментальных результатов, приведенных в табл. 1 и 2, можно

сделать вывод о том, что с использованием предложенного метода переработки ОГФУ удается достичь более чем 95%-ой регенерации фтора из ОГФУ в виде фторида водорода при незначительном избытке кислорода и водорода относительно стехиометрии процесса (3). При этом концентрация получаемой плавиковой кислоты (водного раствора фторида водорода) превышает 90%. Основными урансодержащими веществами являются оксиды урана, и содержание диоксида урана обычно превышает 90%. Примесными фторидами урана являются в основном дифторид-диоксид урана и тетрафторид урана, концентрация которых меняется от единиц до десятых долей процента.

Сравнение сведений, приведенных в табл. 1, с данными табл. 2 и 3, позволяет заключить, что результаты экспериментов по составу продуктов процесса (3) хорошо совпадают с результатами расчета термодинамически равновесного состава веществ в системе элементов U-F-H-O.

Таблица 2

№	W _{UF6} , г/с	Соотношение исходных компонентов	С _F , масс. %	С _{нF} , масс. %	<i>R</i> _F , %
1	3,0	$UF_6 + 3,4H_2 + 1,2O_2$	3,28	94,9	87,9
2	4,4	$UF_6 + 3,1H_2 + 1,0O_2$	1,86	96,3	92,0
3	3,0	$UF_6 + 3,3H_2 + 1,2O_2$	1,35	94,6	93,8
4	6,0	$UF_6 + 3,4H_2 + 1,0O_2$	1,18	100,0	95,3
5	3,0	$UF_6 + 3,4H_2 + 1,3O_2$	1,17	96,2	95,3
6	7,0	$UF_6 + 3,4H_2 + 1,2O_2$	0,98	94,2	95,8
7	6,0	$UF_6 + 3,4H_2 + 1,0O_2$	0,91	98,2	96,0
8	1,5	$UF_6 + 4,7H_2 + 1,2O_2$	0,12	98,5	99,5

Зависимость концентрации фторсодержащих соединений и степени регенерации фтора от расхода ОГФУ и мольного соотношения исходных компонентов

О б о з н а ч е н и я: $W_{\rm UF6}$ – расход ОГФУ, $C_{\rm F}$ – количество ковалентно связанного с ураном фтора, $R_{\rm F}$ – степень регенерации фтора, $C_{\rm HF}$ – концентрация фтористого водорода в плавиковой кислоте.

П р и м е ч а н и е. Экспериментальные значения $C_{\rm F}$ и $C_{\rm HF}$ получены на пилотной установке, значения $R_{\rm F}$ рассчитаны по формуле (9).

Таблица 3

N⁰	W _{UF6} , г/с	Химический состав твердых продуктов, масс. %									Газ, моль		
		UO ₂	U ₃ O ₈	U ₃ O ₇	UO ₃	UO ₂ F ₂	UOF ₄	UF ₄	UF ₅	HF	H ₂ O	Н2	
1	3,0	56,3	5,0	—	18,2	14,1	—	6,4	_	5,27	0,32	0,44	
2	4,4	92,3	_	—	_	_	_	7,7	_	5,52	0,24	0,10	
3	3,0	79,5	14,6	—	_	_	5,9	_	_	5,63	0,37	0,12	
4	6,0	59,3	12,2	23,6	_	_	-	4,9	_	5,72	—	0,54	
5	3,0	_	43,5	51,6	—	_	—	4,9	_	5,75	0,26	0,27	
6	7,0	86,3	9,4	—	0,8	_	—	_	3,4	5,75	0,4	0,13	
7	6,0	96,2	_	_	_	_	_	3,8	_	5,71	0,12	0,55	
8	1,5	60,2	39,2	_	_	0,3	0,3	_	_	5,97	0,10	1,62	

Состав твердых и газообразных продуктов процесса переработки ОГФУ

П р и м е ч а н и я. 1. Все экспериментальные данные получены на пилотной установке. 2. Количества НF, H₂O и H₂, отнесенные к 1 молю ОГФУ, рассчитаны по составу твердых продуктов.

Заключение

Термодинамическими расчетами показано, что гидролиз UF₆ с целью получения оксидов урана и фторида водорода при отсутствии избытка воды целесообразно проводить при температуре свыше 1150 К. Данную температуру можно достичь при обработке ОГФУ в пламени водородсодержащего топлива и кислородсодержащего окислителя.

Расчеты показали, что в термодинамически равновесной смеси в системе элементов U-F-H-O, при температуре свыше 1150 К основным фторсодержащим веществом является фтористый водород, а основным урансодержащим – диоксид урана.

На основе экспериментальных данных, полученных на пилотной установке, установлено, что факел $UF_6-3H_2-O_2$ надежно формируется и стабильно горит в реакторе типа «туннельная горелка» (ее внутренний диаметр равен 142 мм) при инициировании фтор-аммиачной самовоспламеняющейся парой во всем исследованном диапазоне расхода ОГФУ (от 1 до 7 г/с).

Основными урансодержащими продуктами процесса при избытке топлива и окислителя выступают оксиды урана (примерно 10%), представленные, в основном, в виде диоксида урана и октаоксида триурана, при этом содержание UF_4 и UO_2F_2 в оксидах урана изменяется от единиц до десятых долей процента.

Основным фторсодержащим веществом является фторид водорода, концентрация получаемой плавиковой кислоты составляет около 95%.

Степень регенерации фтора из ОГФУ достигает 99%.

Результаты экспериментов по определению состава продуктов процесса обработки ОГФУ в пламени водорода и кислорода хорошо совпадают с расчетными результатами термодинамически равновесного состава веществ в системе элементов U-F-H-O.

Таким образом, получение фторида водорода из ОГФУ можно рекомендовать как основу промышленного метода производства фторида водорода.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации № 05.608.21.0277, идентификационный номер проекта – RFMEFI60819X0277.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Орехов В.Т., Рыбаков А.Г., Шаталов В.В.** Использование обедненного гексафторида урана в органическом синтезе. М.: Энергоатомиздат, 2007. 112 с.

2. Shatalov V., Seredenko V., Kalmakov D., Ivanov A., Gromov O., Parfenov A. Depleted uranium hexafluoride – the fluorine source for production of the inorganic and organic compounds // Journal of Fluorine Chemistry. 2009. Vol. 130. No. 1. Pp. 122–126.

3. Евдокимов А.Н., Громов О.Б., Вдовиченко В.Д., Иванов А.В., Сергеев Г.С., Середенко В.А., Шаталов В.В. Изучение процесса восстановления гексафторида урана водородом на установке «Минимодуль» // Химическая технология. 2009. Т. 10. № 2. С. 118 –125.

4. **Туманов Ю.Н.** Плазменные процессы в ЯТЦ. М.: Физматлит, 2003. 759 с.

5. **Borgard J.M., Herbelet F., Gwinner B.** Recycling hydrofluoric acid in the nuclear industry: The OverAzeotropic Flash process (OVAF) // Journal of Fluorine Chemistry. 2016. Vol. 185. May. Pp. 17–23.

6. Morel B., Duperret B. Uranium and fluorine cycles in the nuclear industry // Journal of Fluorine Chemistry. 2009. Vol. 130. No. 1. Pp. 7–10.

7. Никипелова Н.В. Программа Госкорпо-

рации «Росатом» по безопасному обращению с ОГФУ. Сообщение для заседания Общественного совета Государственной корпорации по атомной энергии «Росатом». М.: Топливная компания «Росатома», 2019. 11 с.

8. **Тураев Н.С., Жерин И.И.** Химия и технология урана. М.: ЦНИИАТОМИНФОРМ, 2005. 407 с.

9. Souil J.M., Joulain P., Gengembre E. Experimental and theoretical study of thermal radiation from turbulent diffusion flames to vertical target surfaces // Combustion Science and Technology. 1984. Vol. 41. No. 1–2. Pp. 69–81.

10. **Мищенко К.П., Равделя А.А.** Краткий справочник физико-химических величин. Ленинград: Химия, 1974. 200 с.

11. Глушко В.П., Гурвич Л.В., Вейц И.В. и др. Термодинамические свойства индивидуальных веществ // Справочное издание в 6 т. М.: Наука, 1978–2004. (3-е изд.). Т. 1–4. 1978–1982.

12. **Трусов Б.Г.** Программная система моделирования фазовых и химических равновесий при высоких температурах // Вестник МГТУ им. Н.Э. Баумана. Серия Приборостроение. Спец. выпуск 2: Программная инженерия. 2012. С. 240–249.

Статья поступила в редакцию 23.09.2020, принята к публикации 06.10.2020.

СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

ПАШКЕВИЧ Дмитрий Станиславович — доктор технических наук, профессор Высшей школы прикладной математики и вычислительной физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29 pashkevich-ds@yandex.ru

ЗИМИН Арсений Романович — аспирант Высшей школы прикладной математики и вычислительной физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29 fz1min@yandex.ru

АЛЕКСЕЕВ Юрий Иванович — кандидат технических наук, инженер ООО «Новые химические продукты», Санкт-Петербург, Российская Федерация.

191186, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, наб. р. Мойки, 11 alexeev-588@yandex.ru

МУХОРТОВ Дмитрий Анатольевич — кандидат технических наук, главный технолог ООО «Новые химические продукты», Санкт-Петербург, Российская Федерация.

191186, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, наб. р. Мойки, 11 dmukhortov@mail.ru

КАМБУР Павел Сергеевич — ассистент Высшей школы прикладной математики и вычислительной физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29 pavel.kambur@mail.ru

ПЕТРОВ Валентин Борисович — старший научный сотрудник Федерального государственного унитарного предприятия «Российский научный центр "Прикладная химия"», Санкт-Петербург, Российская Федерация.

193232, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, пр. Большевиков, 26 valentinpetrov46@mail.ru

БАЖЕНОВ Дмитрий Анатольевич — кандидат химических наук, ведущий специалист АО «Сибирский химический комбинат», г. Северск Томской области, Российская Федерация. 636039, Российская Федерация, г. Северск Томской области, ул. Курчатова, 1 dmitriy_bazhenov@mail.ru

СМОЛКИН Павел Александрович — заместитель начальника центральной заводской лаборатории AO «Сибирский химический комбинат», г. Северск Томской области, Российская Федерация. 636039, Российская Федерация, г. Северск Томской области, ул. Курчатова, 1 spa-net@mail.ru

КАПУСТИН Валентин Валерьевич — ассистент Высшей школы прикладной математики и вычислительной физики Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Российская Федерация.

195251, Российская Федерация, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29 valentin.kapustin.2014@yandex.ru

REFERENCES

1. **Orekhov V.T., Rybakov A.G., Shatalov V.V.,** Ispolzovaniye obednennogo geksaftorida urana v organicheskom sinteze [Using the depleted uranium hexafluoride in the organic synthesis], Energoatomizdat, Moscow, 2007 (in Russian).

2. Shatalov V., Seredenko V., Kalmakov D., et al., Depleted uranium hexafluoride – the fluorine source for production of the inorganic and organic

compounds, Journal of Fluorine Chemistry. 130 (1) (2009) 122–126.

3. Evdokimov A.N., Gromov O.B., Vdovichenko V.D., et al., Uranium hexafluoride reduction with hydrogen in a "Minimodule" unit, Khimicheskaya Technologiya. 10 (2) (2009) 118–125 (in Russian).

4. Tumanov Yu.N., Plazmennyye protsessy v

YaTTS. [Plasma processing in the NFC], Fizmatlit, Moscow, 2003 (in Russian).

5. **Borgard J.M., Herbelet F., Gwinner B.,** Recycling hydrofluoric acid in the nuclear industry: The Over Azeotropic Flash process (OVAF), Journal of Fluorine Chemistry. 185 (May) (2016) 17–23.

6. Morel B., Duperret B., Uranium and fluorine cycles in the nuclear industry, Journal of Fluorine Chemistry. 130 (1) (2009) 7-10.

7. Nikipelova N.V., Programma Goskorporatsii "Rosatom" po bezopasnomu obrashcheniyu s OG-FU [A program of "The Rosatom" state corporation on safe DUHF waste management (Report)], Fuel Company of "The Rosatom", Moscow, 2019 (in Russian).

8. **Turayev N.S., Zherin I.I.,** Khimiya i tekhnologiya urana [Chemistry and technology of uranium], Atominform, Moscow, 2005 (in Russian).

9. Souil J.M., Joulain P., Gengembre E., Experimental and theoretical study of thermal

Received 23.09.2020, accepted 06.10.2020.

radiation from turbulent diffusion flames to vertical target surfaces, Combustion Science and Technology. 41 (1-2) (1984) 69-81.

10. **Mishchenko K.P., Ravdelya A.A.,** Kratkiy spravochnik fiziko-khimicheskikh velichin [Reference book on physical and chemistry quantities], Chemistry Publishing, Leningrad, 1974 (in Russian).

11. **Glushko V.P., Gurvitch L.V., Veits I.V., et al.,** Termodinamicheskiye svoystva individualnykh veshchestv [Thermodynamic properties of the individual substances], Reference Edition (the 3rd) in 6 Vols. Nauka, Moscow, 1978–2004. Vols. 1–4. 1978–1982 (in Russian).

12. **Trusov B.G.,** Programmnaya sistema modelirovaniya fazovykh i khimicheskikh ravnovesiy pri vysokikh temperaturakh [Code system for simulation of phase and chemical equilibriums at higher temperatures], Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Instrument Engineering, Special Iss. 2: Software Engineering (2012) 240–249 (in Russian).

THE AUTHORS

PASHKEVICH Dmitrii S.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University 29, Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation pashkevich-ds@yandex.ru

ZIMIN Arsenii R.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University 29, Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation fz1min@yandex.ru

ALEXEEV Yuri I.

LLC "New chemical products" 11, A, Moyka River Emb., St. Petersburg, 191186, Russian Federation alexeev-588@yandex.ru

MUKHORTOV Dmitrii A.

LLC "New chemical products" 11, A, Moyka River Emb., St. Petersburg, 191186, Russian Federation dmukhortov@mail.ru

KAMBUR Pavel S.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University 29, Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation pavel.kambur@mail.ru

PETROV Valentin B.

Russian Scientific Center "Applied Chemistry" 26, Bolsheviki Ave., St. Petersburg, 193232, Russian Federation valentinpetrov46@mail.ru

BAZHENOV Dmitrii A.

JSC "Siberian Chemical Plant" 1 Kurchatov St., Seversk, Tomsk Region, 636039, Russian Federation dmitriy_bazhenov@mail.ru

SMOLKIN Pavel A.

JSC "Siberian Chemical Plant" 1 Kurchatov St., Seversk, Tomsk Region, 636039, Russian Federation spa-net@mail.ru

KAPUSTIN Valentin V.

Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University 29, Politechnicheskaya St., St. Petersburg, 195251, Russian Federation valentin.kapustin.2014@yandex.ru