

(12) МЕЖДУНАРОДНАЯ ЗАЯВКА, ОПУБЛИКОВАННАЯ В
СООТВЕТСТВИИ С ДОГОВОРом О ПАТЕНТНОЙ КООПЕРАЦИИ (РСТ)

(19) Всемирная Организация
Интеллектуальной Собственности
Международное бюро

(43) Дата международной публикации
11 марта 2021 (11.03.2021)



(10) Номер международной публикации
WO 2021/045636 A1

(51) Международная патентная классификация:
C01G 43/025 (2006.01)

(21) Номер международной заявки: PCT/RU2019/000619

(22) Дата международной подачи:
05 сентября 2019 (05.09.2019)

(25) Язык подачи: Русский

(26) Язык публикации: Русский

(71) Заявитель: ПУБЛИЧНОЕ АКЦИОНЕРНОЕ
ОБЩЕСТВО "НОВОСИБИРСКИЙ ЗАВОД
ХИМКОНЦЕНТРАТОВ" (ПАО "НЗХК")
(PUBLICHNOE AKTSIONERNOE OVSHCHESTVO
"NOVOSIBIRSKY ZAVOD
KHIMKONTSENTRATOV" (PAO NZHK)) [RU/RU];
ул. Б. Хмельницкого, 94 г. Новосибирск, 630110, г.
Novosibirsk (RU).

(72) Изобретатели: ОСТРОВСКИЙ, Дмитрий Юрьевич
(OSTROVSKY, Dmitry Yuryevich); ул. Салты-
кова-Щедрина, 1, кв. 10 г. Новосибирск, 630004,

г. Novosibirsk (RU). ХЛЫТИН, Александр Леонидович
(KHLTYIN, Alexander Leonidovich); ул. Ка-
валерийская, 9, кв. 16 г. Новосибирск, 630105, g.
Novosibirsk (RU). ОСТРОВСКИЙ, Юрий Владими-
рович (OSTROVSKY, Yury Vladimirovich); ул. Сал-
тыкова-Щедрина, 1, кв. 10 г. Новосибирск, 630004, g.
Novosibirsk (RU). ЗАБОРЦЕВ, Григорий Михайло-
вич (ZABORTSEV, Grigory Mikhailovich); ул. Курча-
това, 11/2, кв. 54 г. Новосибирск, 630129, g. Novosibirsk
(RU). ЖЕРИН, Иван Игнатьевич (ZHERIN, Ivan
Ignatyevich); проспект Ленина, 2, кв. 330 г. Томск,
634050, g. Tomsk (RU).

(81) Указанные государства (если не указано иначе, для
каждого вида национальной охраны): AE, AG, AL, AM,
AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ,
CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP,
KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME,
MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ,
OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA,

(54) Title: REACTION CHAMBER FOR PRODUCING URANIUM DIOXIDE POWDER FROM URANIUM HEXAFLUORIDE
BY THE REDUCTION PYROHYDROLYSIS METHOD

(54) Название изобретения: РЕАКЦИОННАЯ КАМЕРА ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПОРОШКА ДИОКСИДА УРАНА МЕТОДОМ
ВОССТАНОВИТЕЛЬНОГО ПИРОГИДРОЛИЗА ГЕКСАФТОРИДА УРАНА

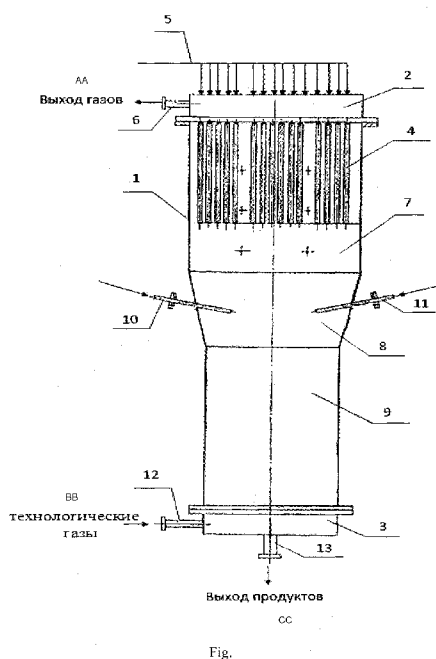


Fig.
AA Outlet for gases
BB Process gases
CC Outlet for products

(57) Abstract: The present device comprises a housing, a top cover, a bottom cover, an upper filtration zone equipped with nitrogen-regenerable cermet filters, a first reaction zone where uranium hexafluoride is converted into uranyl fluoride, a second reaction zone where a fluidized bed is generated to enable reduction of uranyl fluoride to uranium dioxide, a gas distributing plate, tubes for supplying a mixture of steam, hydrogen and nitrogen, two nozzles for feeding in uranium hexafluoride, hydrogen and steam, which are arranged symmetrically to each other on the side wall of the first reaction zone of the housing, and a means for discharging powder from the reaction chamber. The invention makes it possible to increase the time between repairs, to extend the lifetime of filtering elements, and to improve the performance of the device.

(57) Реферат: Устройство содержит корпус, верхнюю крышку, нижнюю крышку, верхнюю зону фильтрации, снабженную металлокерамическими фильтрами, регенерируемыми азотом, первую реакционную зону для превращения гексафторида урана в уранилфторид, вторую реакционную зону для создания псевдооживленного слоя для восстановления уранилфторида до диоксида урана, газораспределительную решетку, патрубки подачи смеси пара, водорода и азота, два сопла для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара, расположенных симметрично на боковой стенке первой реакционной зоны корпуса, и устройство для выгрузки порошка из реакционной камеры. Изобретение обеспечивает увеличение межремонтного «пробега», срока службы фильтрующих элементов и повышение производительности устройства.

SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN,
TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) Указанные государства (если не указано иначе, для каждого вида региональной охраны): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), евразийский (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), европейский патент (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Опубликована:

— с отчётом о международном поиске (статья 21.3)

5 **НАЗВАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ**

РЕАКЦИОННАЯ КАМЕРА ДЛЯ ПОЛУЧЕНИЯ ПОРОШКА
ДИОКСИДА УРАНА МЕТОДОМ ВОССТАНОВИТЕЛЬНОГО
ПИРОГИДРОЛИЗА ГЕКСАФТОРИДА УРАНА

10 **ОБЛАСТЬ ТЕХНИКИ**

Изобретение относится к способам получения соединений металлов, а именно – к устройствам для конверсии гексафторида урана (UF_6) в порошок диоксида урана (UO_2) керамического (до 5% обогащения по U^{235}) сорта методом восстановительного пирогидролита.

15 Процесс описывается следующими химическими реакциями:



ПРЕДШЕСТВУЮЩИЙ УРОВЕНЬ ТЕХНИКИ

20 Известна установка для получения порошка диоксида урана из гексафторида урана, содержащая реакционную камеру для формирования уранилфторида путем гидролиза гексафторида урана в присутствии водяного пара и соединенную с ней вращающуюся трубчатую печь для последующего получения диоксида урана путем восстановления
25 уранилфторида водородом, снабженную средствами нагревания и подвода в противотоке водяного пара и водорода (см. патент РФ № 2162058).

Недостатком данной установки является разделение химической реакции получения оксида урана на несколько этапов, осуществляемых в разных узлах, что приводит к увеличению габаритов установки и росту
30 эксплуатационных затрат.

Наиболее близкой по технической сущности и достигаемому результату к предлагаемому изобретению является установка для осуществления способа получения порошка диоксида урана из гексафторида

урана методом пирогидролиза, содержащая обогреваемую реакционную камеру, имеющую фильтровальную зону с системой регенерации фильтров, первую реакционную зону для превращения гексафторида урана в уранилфторид и вторую реакционную зону с газораспределительной решеткой для создания псевдооживленного слоя для восстановления уранилфторида до диоксида урана, средства выгрузки полученного порошка диоксида урана (см. патент РФ № 2381993) - прототип.

Недостатком данной установки является образование на стенках реакционной камеры и фильтрующих элементах отложений полупродуктов реакции конверсии гексафторида урана в диоксид, состоящих преимущественно из уранилфторида и закиси-окиси урана: твердые отложения локализуются в верхнем углу зоны фильтрации, противоположном расположению сопла подачи смеси гексафторида урана, водорода и паров воды. Место локализации обусловлено взаимодействием потока смеси гексафторида урана, водорода и паров воды, подаваемой через сопло в реакционную зону, и смеси паров воды, водорода и азота, поступающей в нижнюю реакционную зону под газораспределительную решетку.

В процессе такого взаимодействия в реакционной камере наблюдается неравномерная нагрузка на фильтрующие элементы мелкой фракции частиц твердых продуктов (UO_2F_2 , U_3O_8 и др.) пирогидролиза гексафторида урана, поэтому система регенерации фильтров методом обратной продувки азотом не всегда справляется со своей задачей обеспечения полной регенерации фильтров, особенно тех, что расположены в верхнем углу зоны фильтрации в зоне накопления твердых отложений.

В результате неполной регенерации фильтров происходит их постепенная забивка продуктами пирогидролиза гексафторида урана. В результате происходит рост гидравлического сопротивления реакционной камеры в целом, что приводит к необходимости длительной остановки

5 процесса для охлаждения реакционной камеры и замены металлокерамических фильтров.

Основной причиной образования полупродуктов реакций пирогидролиза гексафторида урана является недостаточность времени реагирования, необходимого для формирования частиц уранилфторида, способных самостоятельно переместиться из первой реакционной зоны во
10 вторую реакционную зону, где в псевдооживленном слое происходит восстановление частиц уранилфторида до диоксида урана.

Недостаток временного фактора приводит к образованию мелкой фракции уранилфторида и закиси-окиси урана и их интенсивному выносу в
15 фильтровальную зону, что неизбежно ведёт к забивке фильтрующих элементов.

РАСКРЫТИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ

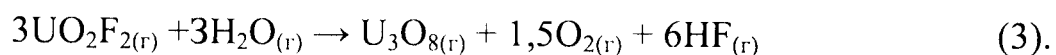
Технической задачей настоящего изобретения является увеличение межремонтного «пробега» реакционной камеры, увеличение срока службы
20 фильтрующих элементов и повышение производительности камеры за счёт сведения к минимуму образования полупродуктов.

Поставленная задача решается тем, что в реакционной камере для получения порошка диоксида урана методом восстановительного пирогидролиза гексафторида урана, содержащей корпус, снабженный
25 верхней и нижней крышками и имеющий зоны: верхнюю зону фильтрации, снабженную металлокерамическими фильтрами, регенерируемыми азотом, первую реакционную зону для превращения гексафторида в уранилфторид, при этом в первой реакционной зоне корпуса на боковой стенке имеется сопло для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара, вторую
30 реакционную зону с газораспределительной решеткой для создания псевдооживленного слоя для восстановления уранилфторида до диоксида урана с патрубком подачи смеси пара, водорода и азота, и снабженной устройством для выгрузки порошка, согласно изобретению, первая

5 реакционная зона корпуса камеры дополнительно снабжена вторым соплом для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара, расположенным на боковой стенке корпуса симметрично первому соплу. Поставленная задача решается также тем, что оба сопла для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара выполнены подвижными в вертикальной плоскости. Задача
10 решается также тогда, когда в одно сопло первой реакционной зоны будет подаваться гексафторид урана, а во второе - водород и водяной пар в эквивалентном количестве.

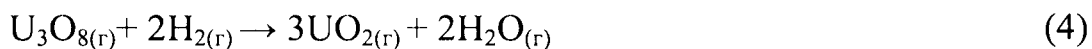
Снабжение первой реакционной зоны корпуса реакционной камеры дополнительным соплом для подачи гексафторида урана, водорода и
15 водяного пара и расположение его симметрично имеющемуся на корпусе реакционной камеры соплу позволяет выравнивать поток газов в верхней зоне фильтрации параллельно ее стенкам и обеспечивать равномерную нагрузку фильтров по подаваемым мелким частицам, образующимся при пиролизе гексафторида урана, соответственно, обеспечить
20 равномерную регенерацию всех фильтров при обратной продувке, исключить быстрое зарастание фильтров продуктами пиролиза гексафторида урана.

Выполнение сопел для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара подвижными в вертикальной плоскости позволит
25 регулировать угол наклона сопел, что, в свою очередь, даст возможность влиять на время нахождения образующихся частиц уранилфторида в первой реакционной зоне и формировать размер твёрдых частиц необходимого размера. Кроме того, будут сведены к минимуму условия образования закиси-окиси урана по реакции (3) и, как следствие, снижены нагрузки на
30 фильтрующие элементы в целом:



Подача водорода в первую реакционную зону через дополнительное сопло позволит повысить концентрацию водорода и увеличить скорость

5 протекания реакций довосстановления мелкодисперсных частиц уранилфторида и закиси-окиси урана по реакциям (2) и (4):



без влияния на гидродинамические условия протекания процесса восстановления уранилфторида водородом в «кипящем» слое второй
10 реакционной зоны.

Разделение подачи гексафторида урана в одно сопло, а водорода и водяного пара - во второе позволяет точнее регулировать подачу в реакционную камеру каждого из компонентов смеси и, тем самым, влиять на качественные и количественные показатели процесса в целом.

15

Краткое описание чертежей

Сущность изобретения поясняется чертежом.

На фиг. показана реакционная камера для получения порошка диоксида урана методом восстановительного пирогидролиза гексафторида
20 урана.

Реакционная камера содержит корпус 1, верхнюю крышку 2 и нижнюю крышку 3 с газораспределительной решеткой (не показана), герметично соединенные между собой с помощью фланцевых соединений. На фланце верхней крышки 2 герметично закреплены сменные металлокерамические
25 фильтры 4. Каждый металлокерамический фильтр 4 снабжен системой ввода 5, установленной в верхней крышке 2, для импульсной подачи азота, необходимого для регенерации фильтра. В боковой стенке компенсационного объема верхней крышки 2 предусмотрен патрубок 6 для выхода отработавших газов.

30 Корпус 1 реакционной камеры состоит из верхней зоны фильтрации 7, в которой установлены металлокерамические фильтры 4, размещенной в верхней части корпуса 1, первой реакционной зоны 8 для превращения гексафторида в уранилфторид и второй реакционной зоны 9 для создания

5 псевдоожигенного слоя для восстановления уранилфторида до диоксида урана.

Первая реакционная зона 8 корпуса реакционной камеры соединяет верхнюю зону фильтрации 7 со второй реакционной зоной 9 псевдоожигенного слоя. В первой реакционной зоне 8 симметрично
10 размещены два сопла 10 и 11 для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара. Нижняя крышка 3 снабжена патрубком 12 для подачи в нее смеси пара, водорода и азота и патрубком 13 устройства для выгрузки порошка, герметично связанным с газораспределительной решеткой.

15 Лучший вариант осуществления изобретения

Реакционная камера работает следующим образом.

Реакционную камеру предварительно разогревают до температуры 450°- 500°С в верхней зоне фильтрации 7 и в первой реакционной зоне 8 и 580°-635°С — во второй реакционной зоне 9. В первую реакционную зону 8
20 через сопла 10 и 11, симметрично расположенные на противоположных стенках корпуса 1 первой реакционной зоны 8, подается гексафторид урана, водород и водяной пар. Введенные реагенты вступают друг с другом в реакцию, при этом образуется порошок уранилфторида, крупная фракция которого опускается во вторую реакционную зону 9 псевдоожигенного слоя
25 и задерживается газораспределительной решеткой нижней крышки 3, а частицы мелкой фракции поднимаются вверх, задерживаются металлокерамическими фильтрами 4 и периодически регенерируются обратной продувкой азотом. Отдутые азотом частицы уранилфторида попадают в псевдоожигенный слой второй реакционной зоны 9.

30 Через патрубок 12 нижней крышки 3 под газораспределительную решетку подается смесь водяного пара, водорода и азота, создающая над газораспределительной решеткой псевдоожигенный слой, в котором происходит восстановление уранилфторида до диоксида урана. По мере

7

5 накопления порошок диоксида урана эвакуируется из реакционной камеры через патрубок 13 устройства для выгрузки порошка из реакционной камеры.

Симметричное расположение сопел 10 и 11 при равенстве потоков обеспечивает выравнивание потока газов в верхней зоне фильтрации 7 параллельно ее стенкам и обеспечивает равномерную нагрузку фильтров 4. В
10 результате увеличивает межремонтный «пробег» реакционной камеры. Исключение накопления полупродуктов ведёт к повышению производительности реакционной камеры.

Промышленная применимость

15 Таким образом, снабжение конструкции реакционной камеры для получения порошка диоксида урана методом восстановительного пирогидролиза гексафторида урана дополнительным соплом позволяет решить поставленную задачу увеличения межремонтного «пробега» камеры, увеличения срока службы фильтрующих элементов и добиться повышения
20 производительности камеры за счет сведения к минимуму образование полупродуктов.

25

30

Формула изобретения

5

10

15

20

25

30

Пункт 1. Реакционная камера для получения порошка диоксида урана методом восстановительного пирогидролиза гексафторида урана, представляющая собой корпус с верхней и нижней крышкой, содержащий верхнюю зону фильтрации, снабженную металлокерамическими фильтрами, регенерируемыми азотом, первую реакционную зону для превращения гексафторида урана в уранилфторид, вторую реакционную зону с газораспределительной решеткой для создания псевдоожиженного слоя для восстановления уранилфторида до диоксида урана с патрубком подачи смеси пара, водорода и азота, и снабженный соплом для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара, расположенным на боковой стенке первой реакционной зоны корпуса, и устройством для выгрузки порошка из реакционной камеры, отличающаяся тем, что корпус реакционной камеры дополнительно снабжен вторым соплом для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара, расположенным на стенке первой реакционной зоны корпуса симметрично первому.

Пункт 2. Реакционная камера по п. 1, отличающаяся тем, что сопла для подачи гексафторида урана, водорода и водяного пара выполнены подвижными в вертикальной плоскости.

Пункт 3. Реакционная камера по п. 1, отличающаяся тем, что одно сопло служит входом для подачи гексафторида урана, а второе сопло служит входом для подачи водорода и водяного пара.

1/1

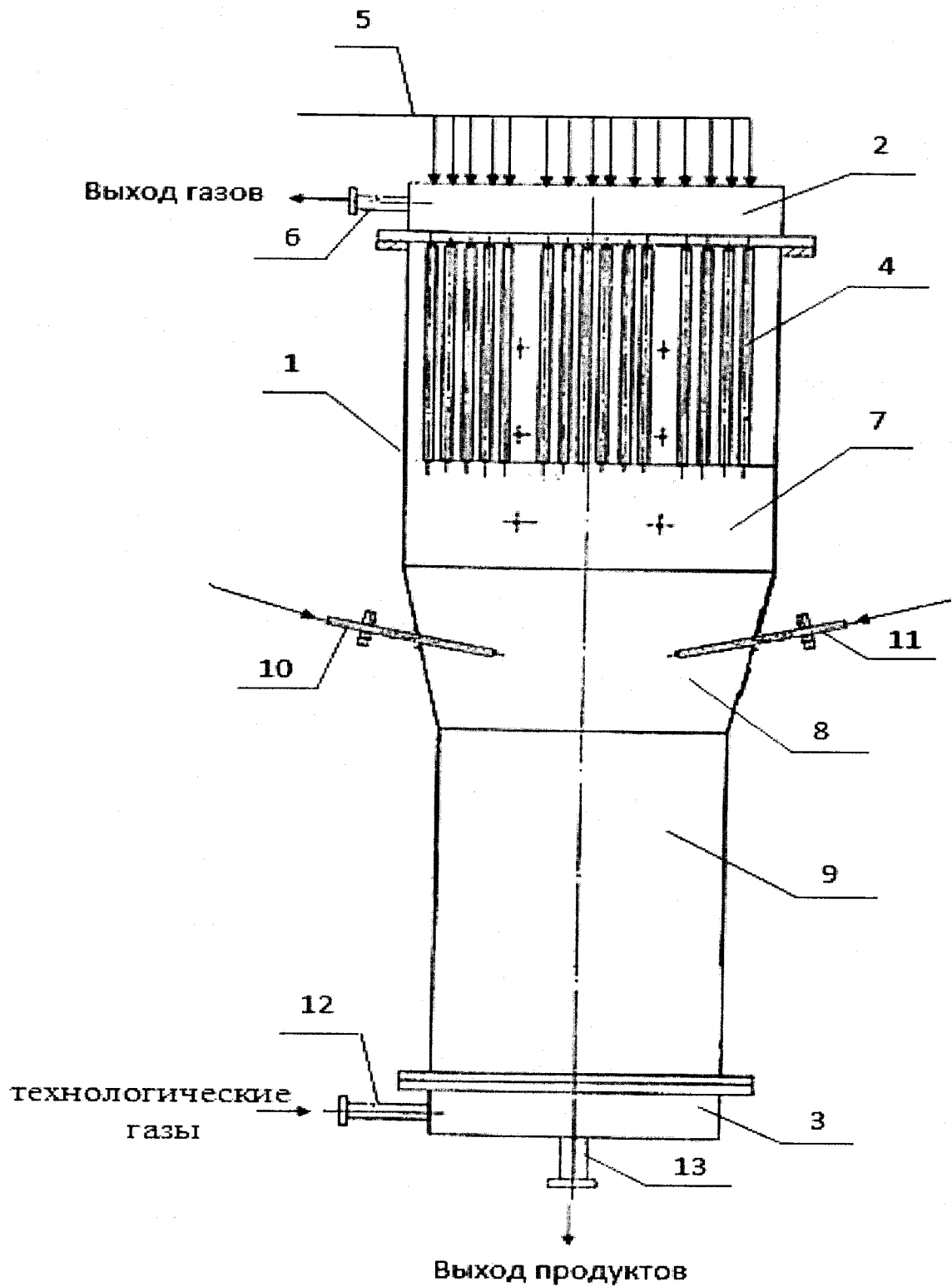


Fig.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/RU 2019/000619

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C01G 43/025 (2006.01)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

Espacenet, PatSearch, PAJ, USPTO, RUPTO, WIPO

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	RU 2381993 C2 (OAO «MASHINOSTROITELNY ZAVOD») 20.02.2010, p. 4, line 49 -p. 6, line 11, the claims, fig. 2	1-2
A		3
Y	SU 1229640 A1 (DNEPROPETROVSKY FILIAL NAUCHNO- ISSELEDOVATELSKOGO INSTITUTA REZINOVOI PROMYSHLENNOSTI) 07.05.1986, col. 2, lines 2-5	1-2
A		3
Y	SU 1274775 A1 (KRIUCHKOV G.V. et al.) 07.12.1976, the claims	2
A	EP 0230087 A2 (SIEMENS AG) 29.07.1987	1-3



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

31 January 2020 (31.03.2020)

Date of mailing of the international search report

06 February 2020 (06.02.2020)

Name and mailing address of the ISA/
RU

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

ОТЧЕТ О МЕЖДУНАРОДНОМ ПОИСКЕ

Номер международной заявки

PCT/RU 2019/000619

А. КЛАССИФИКАЦИЯ ПРЕДМЕТА ИЗОБРЕТЕНИЯ C01G43/025(2006.01)		
Согласно Международной патентной классификации МПК		
В. ОБЛАСТЬ ПОИСКА Проверенный минимум документации (система классификации с индексами классификации) C01G		
Другая проверенная документация в той мере, в какой она включена в поисковые подборки		
Электронная база данных, использовавшаяся при поиске (название базы и, если, возможно, используемые поисковые термины) Espacenet, PatSearch, PAJ, USPTO, RUPTO, WIPO		
С. ДОКУМЕНТЫ, СЧИТАЮЩИЕСЯ РЕЛЕВАНТНЫМИ:		
Категория*	Цитируемые документы с указанием, где это возможно, релевантных частей	Относится к пункту №
Y	RU 2381993 C2 (ОАО «МАШИНОСТРОИТЕЛЬНЫЙ ЗАВОД») 20.02.2010, с. 4, строка 49 –с. 6, строка 11, формула, фиг. 2	1-2
A		3
Y	SU 1229640 A1 (ДНЕПРОПЕТРОВСКИЙ ФИЛИАЛ НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ИНСТИТУТА РЕЗИНОВОЙ ПРОМЫШЛЕННОСТИ) 07.05.1986, столбец 2, строки 2-5	1-2
A		3
Y	SU 1274775 A1 (КРЮЧКОВ Г.В. и др..) 07.12.1976, формула	2
A	EP 0230087 A2 (SIEMENS AG) 29.07.1987	1-3
☐ последующие документы указаны в продолжении графы С. ☐ данные о патентах-аналогах указаны в приложении		
* “А” “Е” “L” “О” “Р”	Особые категории ссылочных документов: документ, определяющий общий уровень техники и не считающийся особо релевантным более ранняя заявка или патент, но опубликованная на дату международной подачи или после нее документ, подвергающий сомнению притязание(я) на приоритет, или который приводится с целью установления даты публикации другого ссылочного документа, а также в других целях (как указано) документ, относящийся к устному раскрытию, использованию, экспонированию и т.д. документ, опубликованный до даты международной подачи, но после даты испрашиваемого приоритета	“Т” более поздний документ, опубликованный после даты международной подачи или приоритета, но приведенный для понимания принципа или теории, на которых основывается изобретение “Х” документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; заявленное изобретение не обладает новизной или изобретательским уровнем, в сравнении с документом, взятым в отдельности “У” документ, имеющий наиболее близкое отношение к предмету поиска; заявленное изобретение не обладает изобретательским уровнем, когда документ взят в сочетании с одним или несколькими документами той же категории, такая комбинация документов очевидна для специалиста “&” документ, являющийся патентом-аналогом
Дата действительного завершения международного поиска 31 января 2020 (31.01.2020)		Дата отправки настоящего отчета о международном поиске 06 февраля 2020 (06.02.2020)
Наименование и адрес ISA/RU: Федеральный институт промышленной собственности, Бережковская наб., 30-1, Москва, Г-59, ГСП-3, Россия, 125993 Факс: (8-495) 531-63-18, (8-499) 243-33-37		Уполномоченное лицо: Воротилина Е. Телефон № 8(499)240-25-91