

**ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ И ИССЛЕДОВАНИЕ НАНОРАЗМЕРНЫХ СЛОЖНЫХ  
ОКСИДНЫХ КОМПОЗИЦИЙ ДЛЯ ПЕРСПЕКТИВНЫХ ТИПОВ ДИСПЕРСИОННОГО  
ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

А.А. Каренгин, А.Е. Тихонов, И.Ю. Новоселов,

Научный руководитель: доцент, к.ф.-м.н., А.Г. Каренгин

Национальный исследовательский Томский политехнический университет,

Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050

E-mail: karengin@tpu.ru

**PLASMACHEMICAL SYNTHESIS AND STUDY OF NANOSIZED COMPLEX OXIDE  
COMPOSITIONS FOR PROSPECTIVE DISPERSION NUCLEAR FUELS**

A.A. Karengin, A.E. Tikhonov, I.Yu. Novoselov

Scientific Supervisor: associate professor, PhD A.G. Karengin

Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050

E-mail: karengin@tpu.ru

***Abstract.** This paper presents the results of experimental studies of the process of plasmachemical synthesis of fuel oxide compositions for different types of dispersion nuclear fuel. The precursors were modeling water-organic nitrate solutions having a lower calorific value of at least 8.4 MJ/kg and including an organic component (acetone) and mixed water nitrate solutions of a matrix metal (magnesium), as well as neodymium, samarium and cerium, having similar physicochemical properties with fissile metals (uranium, plutonium and thorium). There were determined the compositions and modes of processing modeling solutions that provide plasmachemical synthesis of nanosized complex oxide compositions in the air-plasma.*

**Введение.** Применяемое в реакторах на тепловых нейтронах керамическое ядерное топливо (ЯТ) из диоксида урана, обогащенного по изотопу уран-235, имеет ряд существенных недостатков: низкая теплопроводность, высокая хрупкость и склонность к растрескиванию, короткий цикл использования и ограниченный ресурс изотопа уран-235.

Одним из приоритетных направлений дальнейшего развития ядерной энергетики является создание реакторов на быстрых нейтронах и использование дисперсионного ЯТ в виде сложных оксидных композиций (ОК), включающих делящиеся металлы (уран, плутоний, торий) и матрицу с высокой теплопроводностью и низким поглощением нейтронов [2]. Общими недостатками применяемых технологий получения ОК, включающих раздельное получение и механическое смешение оксидов делящихся металлов и матрицы, являются: многостадийность, неравномерное распределение фаз, необходимость использования большого количества химических реагентов и высокие энергозатраты [1]. К преимуществам плазмохимического синтеза таких ОК из водно-органических нитратных растворов (ВОНР), имеющих низшую теплотворную способность не менее 8,4 МДж/кг, следует отнести: одностадийность, гомогенное распределение фаз с заданным стехиометрическим составом, возможность активно влиять на размер и морфологию частиц и низкие энергозатраты [2].

**Экспериментальная часть.** Экспериментальные исследования процесса плазмохимического синтеза ОК ( $\text{UO}_2\text{-MgO}$ ,  $\text{UO}_2\text{-PuO}_2\text{-MgO}$ ,  $\text{UO}_2\text{-ThO}_2\text{-MgO}$  и  $\text{PuO}_2\text{-ThO}_2\text{-MgO}$ ) в воздушно-плазменном потоке проводились на плазменном стенде «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01» на модельных растворах ВОНР, включающих органический компонент (ацетон) и смешанные водные нитратные растворы металла матрицы (магний), а также неодим, самарий и церий, имеющие близкие физико-химические свойства с делящимися металлами (уран, плутоний и торий).

Подготовленные растворы ВОНР подавались с постоянным расходом (300 л/ч) в диспергатор и далее поступали в реактор, где в воздушно-плазменном потоке осуществлялся синтез модельных ОК при температуре  $T_p \geq 1000^\circ\text{C}$ . Контроль температуры осуществлялся высокоточным цифровым инфракрасным пирометром (IRE 140/45) по линии поглощения диоксида углерода. После реактора полученные ОК поступали в узел «мокрой» очистки (УМО), где происходило их резкое охлаждение (закалка) с получением водных суспензий, которые отстаивали, полученные осадки отделяли, фильтровали и прокачивали в течение 20 минут при температуре  $150^\circ\text{C}$ . В результате проведенных исследований установлены закономерности влияния состава растворов ВОНР, режимов их диспергирования, а также скорости закалки на физико-химические свойства ОК.

**Анализ порошков оксидных композиций.** Для исследования основных параметров полученных порошков проводились лазерная дифракция водных суспензий ОК, сканирующая электронная микроскопия, БЭТ анализ и рентгенофазовый анализ порошков ОК.

Показано, что при постоянном расходе воды на закалку (2,8 кг/с) и частоте диспергатора (35 Гц) увеличение содержания нитрата неодима с 300 г/л до 1000 г/л в растворах ВОНР и нитрата магния с 300 г/л до 700 г/л приводит к увеличению размера ОК ( $\text{Nd}_2\text{O}_3$  и  $\text{MgO}$ ) после УМО соответственно с 7,8 мкм до 8,7 мкм и с 9,5 мкм до 13,2 мкм (метод лазерной дифракции), а снижение расхода воды на закалку ОК с 2,8 кг/с до 2,3 кг/с приводит к увеличению размера ОК. Увеличение массовой доли матрицы ( $\text{MgO}$ ) от 5 % до 50 % в составе ОК ( $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ ) приводит при расходе воды на закалку ОК (2,8 кг/с) и частоте диспергатора (35 Гц) к увеличению размера ОК после УМО с 13,0 мкм до 4,7 мкм (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК и размер частиц (зерен) лежит соответственно в пределах 53-123 нм и 11,2-15,2  $\text{m}^2/\text{г}$  (БЭТ-анализ).

Увеличение доли матрицы ( $\text{MgO}$ ) от 5 до 50 % в составе ОК ( $\text{Sm}_2\text{O}_3\text{-Nd}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ ) (при  $\alpha = \text{Sm}_2\text{O}_3 / (\text{Sm}_2\text{O}_3 + \text{Nd}_2\text{O}_3) = 0,1$ ), приводит, при постоянном расходе воды на закалку ОК (2,8 кг/с) и частоте диспергатора (50 Гц) к снижению размера ОК с 13,5 мкм до 4,3 мкм (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с 10,1  $\text{m}^2/\text{г}$  до 21,0  $\text{m}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК снижается с 79 нм до 38 нм (БЭТ-анализ). Увеличение доли матрицы ( $\text{MgO}$ ) от 5 % до 50 % в составе ОК (при  $\alpha = 0,2$ ), также приводит к снижению размера ОК с 12,9 до 5,3 мкм (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с 10,0  $\text{m}^2/\text{г}$  до 12,6  $\text{m}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК снижается с 79 нм до 63 нм (БЭТ-анализ). Увеличение доли  $\text{MgO}$  от 5 % до 50 % в составе ОК (при  $\alpha = 0,3$ ), также приводит к снижению размера образующихся ОК с 6,6 до 4,7 мкм (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК также уменьшается с 15,2  $\text{m}^2/\text{г}$  до 11,9  $\text{m}^2/\text{г}$  (БЭТ-анализ).

Увеличение массовой доли матрицы ( $\text{MgO}$ ) от 5 % до 30 % в составе ОК ( $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Ce}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ ) (при  $\alpha = \text{Nd}_2\text{O}_3 / (\text{Nd}_2\text{O}_3 + \text{Ce}_2\text{O}_3) = 0,1$ ), приводит при постоянном расходе воды на закалку ОК (2,8 кг/с) и частоте диспергатора (35 Гц) к увеличению размера ОК после УМО с 10,7 мкм до 13,9 мкм (метод ЛД).

При этом удельная поверхность ОК увеличивается с  $12,5 \text{ м}^2/\text{г}$  до  $12,8 \text{ м}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК снижается с  $78 \text{ нм}$  до  $76 \text{ нм}$  (БЭТ-анализ). Увеличение массовой доли  $\text{MgO}$  от  $10 \%$  до  $30\%$  в составе ОК (при  $\alpha=0,5$ ), приводит при увеличении частоты диспергатора с  $35 \text{ Гц}$  до  $50 \text{ Гц}$  к снижению размера ОК после УМО с  $9,8$  до  $9,3 \text{ мкм}$  (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с  $13,1 \text{ м}^2/\text{г}$  до  $16,4 \text{ м}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК снижается с  $68 \text{ нм}$  до  $65 \text{ нм}$  (БЭТ-анализ). Увеличение доли  $\text{MgO}$  от  $10 \%$  до  $30 \%$  в составе ОК (при  $\alpha=0,7$ ), также приводит при частоте диспергатора  $50 \text{ Гц}$  к снижению размера образующихся ОК после УМО с  $9,3$  до  $8,78 \text{ мкм}$  (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с  $13,9 \text{ м}^2/\text{г}$  до  $15,4 \text{ м}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК увеличивается с  $64 \text{ нм}$  до  $69 \text{ нм}$  (БЭТ-анализ).

Увеличение массовой доли матрицы ( $\text{MgO}$ ) от  $10 \%$  до  $30 \%$  в составе ОК ( $\text{Sm}_2\text{O}_3\text{-Ce}_2\text{O}_3\text{-MgO}$ ) (при  $\alpha=\text{Sm}_2\text{O}_3/(\text{Sm}_2\text{O}_3+\text{Ce}_2\text{O}_3)=0,1$ ), приводит при постоянном расходе воды на закалку ОК ( $2,8 \text{ кг/с}$ ) и частоте диспергатора ( $50 \text{ Гц}$ ) к снижению размера ОК после УМО с  $9,4 \text{ мкм}$  до  $7,4 \text{ мкм}$  (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с  $7,9 \text{ м}^2/\text{г}$  до  $11,2 \text{ м}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК снижается с  $110 \text{ нм}$  до  $86 \text{ нм}$  (БЭТ-анализ). Увеличение доли  $\text{MgO}$  от  $10 \%$  до  $30 \%$  в составе ОК (при  $\alpha=0,2$ ), приводит при частоте диспергатора  $50 \text{ Гц}$  к снижению размера ОК после УМО с  $12,3 \text{ мкм}$  до  $6,6 \text{ мкм}$  (метод ЛД). Увеличение доли  $\text{MgO}$  от  $10 \%$  до  $30 \%$  в составе ОК (при  $\alpha=0,3$ ), также приводит при частоте диспергатора  $50 \text{ Гц}$  к образованию ОК после УМО от  $7,4$  до  $7,5 \text{ мкм}$  (метод ЛД). При этом удельная поверхность ОК увеличивается с  $9,5 \text{ м}^2/\text{г}$  до  $11,9 \text{ м}^2/\text{г}$ , а размер частиц (зерен) в составе ОК уменьшается с  $90 \text{ нм}$  до  $80 \text{ нм}$  (БЭТ-анализ).

Таким образом, определены составы модельных растворов ВОНР и режимы их переработки, обеспечивающие плазмохимический синтез в воздушно-плазменном потоке наноразмерных сложных оксидных композиций.

**Заключение.** Результаты проведенных исследований могут быть использованы при создании технологии плазмохимического синтеза наноразмерных топливных оксидных композиций для различных типов дисперсионного ядерного топлива.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект № 18-19-00136).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Алексеев С.В., Зайцев В.А., Толстоухов С.С. Дисперсионное ядерное топливо. – М.: Техносфера, 2015. – 248 с.
2. I.Yu. Novoselov, A.G. Karengin, R.G. Babaev. Simulation of Uranium and Plutonium Oxides Compounds Obtained in Plasma // AIP Conference Proceedings. – 2018. – Vol. 1938. – P. 1–5.