

УДК 621.387.143: 621.039.54

**ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ И ИССЛЕДОВАНИЕ НАНОРАЗМЕРНЫХ СЛОЖНЫХ
ОКСИДНЫХ КОМПОЗИЦИЙ. ИМИТИРУЮЩИХ ДИСПЕРСИОННОЕ МОХ-ТОПЛИВО**В.И. Расторгуев, А.Г. Каренгин, 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 DISPERSION MOX-FUEL**V.I. Rastorguev, A.G. Karengin, 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 dispersion MOX-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, yttrium, etc.), as well as neodymium and samarium, having similar physical-chemical properties with fissile metals (uranium, plutonium). 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. Одним из приоритетных направлений дальнейшего развития ядерной энергетики в России является создание реакторов на быстрых нейтронах и использование МОХ-топлива, получаемого при переработке ОЯТ. При этом использование изотопов уран-238 и плутоний-239 не потребует дорогостоящего изотопного обогащения и позволит повторно использовать накопленные запасы урана и плутония из ОЯТ для изготовления МОХ-топлива. Однако у этого топлива остается существенный недостаток – низкая теплопроводность.

Перспективным является использование дисперсионного МОХ-топлива в виде сложных оксидных композиций (СОК), в которых включения из оксидов делящихся металлов (уран, плутоний) равномерно распределены в оксидной матрице, имеющей высокую теплопроводность и низкое поперечное сечение поглощения нейтронов [1].

Общими недостатками применяемых технологий получения СОК (раздельное получение и механическое смешение, золь-гель процесс и др.) являются: многостадийность; необходимость использования большого количества химических реагентов; неравномерное распределение фаз, дополнительное водородное восстановление СОК, высокие энерго- и трудозатраты [1].

Перспективным является применение плазмы для плазмохимического синтеза СОК из диспергированных водных нитратных растворов (ВНР), которое обеспечивает: одностадийность,

высокую скорость; возможность активно влиять на размер и морфологию частиц, гомогенное распределение фаз. Однако плазменная переработка только растворов ВНР требует значительных энергозатрат (до 4 МВт·ч/т) и не позволяет получать в одну стадию СОК требуемого фазового состава без дополнительного водородного восстановления [2].

К преимуществам плазмохимического синтеза СОК из диспергированных водно-органических нитратных растворов (ВОНР), включающих растворы ВНР, органический компонент (спирты, кетоны) и имеющих низшую теплотворную способность не менее 8,4 МДж/кг, следует отнести: одностадийность, высокую скорость; возможность активно влиять на размер и морфологию частиц; гомогенное распределение и требуемый состав фаз без дополнительного водородного восстановления, низкие энерго- и трудозатраты [3].

Экспериментальная часть. Экспериментальные исследования процесса плазмохимического синтеза СОК « $\text{UO}_2\text{--PuO}_2\text{--MgO}$ » в воздушно-плазменном потоке проводились на плазменном стенде «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01» (рабочая частота 13,56 МГц, колебательная мощность 60 кВт) на растворах ВОНР, включающих смешанные водные нитратные растворы неодима (вместо урана) и самария (вместо плутония), имеющие близкие физико-химические свойства с делящимися металлами (уран, плутоний), а также металлов матрицы (магний, иттрий) и органический компонент (ацетон).

В результате проведенных исследований были определены следующие оптимальные режимы совместной работы высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01 (рабочая частота – 13,56 МГц, колебательная мощность до 60 кВт), высокочастотного факельного плазмотрона (ВЧФ-плазмотрона) и плазмохимического реактора в составе плазменного стенда «Плазменный модуль на базе высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01»: генератор ВЧГ8-60/13-01 ($U_a=5,6$ кВ, $I_a=3,5$ А, $I_c=1,2$ А); ВЧФ-плазмотрон ($P_{\text{ср}}=15,0$ кВт); плазмохимический реактор ($S_{\text{имп}}=1320$ см², $Q_{\text{возд}}=0,95$ кг/с).

Подготовленные растворы ВОНР подавались с постоянным расходом (300 л/ч) в диспергатор и далее поступали в реактор, где в воздушно-плазменном потоке осуществлялся синтез СОК при температуре $T_p=(1100\pm 50)^\circ\text{C}$. Контроль температуры осуществлялся высокоточным цифровым инфракрасным пирометром (IPE 140/45) по линии поглощения диоксида углерода. После реактора полученные СОК 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 30 минут при температуре 150 °С.

Анализ сложных оксидных композиций. Для исследования свойств полученных СОК проводились лазерная дифракция водных суспензий, СЭМ, БЭТ-анализ и РФА порошков СОК.

Показано, что увеличение массовой доли матрицы (MgO) в составе СОК «оксид неодима-оксид самария-оксид магния» от нуля до 50 % в составе СОК, полученных при частоте вращения ротора диспергатора $f_d = 35$ Гц, расходе оборотной воды на «закалку» СОК $Q_{\text{ов}} = 2,8$ кг/с, $\alpha = \text{оксид неодима}/(\text{оксид неодима}+\text{оксид самария}) = 0,1$, приводит к снижению размера частиц СОК (D_{50}) в водной суспензии после УМО с 13,5 мкм до 4,3 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК ($S_{\text{уд}}$) увеличивается с 10,4 м²/г до 21,0 м²/г, а размер кристаллитов ($D_{\text{крист}}$) в составе СОК снижается с 79 нм до 38 нм. Увеличение массовой доли MgO от нуля до 50 % в составе СОК (при $f_d = 35$ Гц, $Q_{\text{ов}} = 2,8$ кг/с, $\alpha=0,2$) также приводит к снижению размера частиц СОК в водной суспензии после УМО с 12,9 мкм до

5,3 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК увеличивается с 10,0 м²/г до 12,6 м²/г, а размер кристаллитов в них снижается с 79 нм до 59 нм. Увеличение массовой доли MgO от нуля до 50 % в составе СОК (при $f_d = 35$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,3$) также приводит к снижению размера образующихся частиц СОК в водной суспензии после УМО с 8,6 мкм до 4,5 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК увеличивается с 15,4 м²/г до 17,9 м²/г. Это позволяет утверждать, что полученные порошки СОК также состоят из наноразмерных кристаллитов.

При повышении частоты f_d с 35 Гц до 50 Гц увеличение массовой доли матрицы (MgO) в составе СОК от 10 % до 30 % приводит к снижению размера образующихся частиц СОК в водных суспензиях после УМО с 9,4 мкм до 5,9 мкм (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,1$), с 9,1 мкм до 5,9 мкм (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,2$) и с 6,4 мкм до 4,7 мкм (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,3$). Это позволяет утверждать, что полученные порошки СОК также состоят из наноразмерных кристаллитов.

Показано, что увеличение массовой доли матрицы (Y₂O₃) в составе СОК «оксид неодима-оксид самария-оксид иттрия» от 10 % до 30 % (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,1$) приводит к снижению размера частиц СОК в водной суспензии после УМО с 12,1 мкм до 11,2 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК увеличивается с 5,5 м²/г до 7,8 м²/г, а размер кристаллитов в них снижается с 147 нм до 115 нм. Увеличение массовой доли матрицы (Y₂O₃) с 10 % до 30 % в составе СОК (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,3$) также приводит к снижению размера частиц СОК в водных суспензиях после УМО с 13,6 мкм до 10,2 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК увеличивается с 6,9 м²/г до 8,6 м²/г, а размер кристаллитов в них снижается с 118 нм до 93 нм. Это позволяет утверждать, что полученные порошки СОК также состоят из наноразмерных кристаллитов.

Таким образом, определены составы растворов ВОНР и режимы их плазменной переработки, обеспечивающие плазмохимический синтез в воздушно-плазменном потоке наноразмерных сложных оксидных композиций «оксид неодима-оксид самария - оксид магния» и «оксид неодима - оксид самария - оксид иттрия», имитирующих уран-ториевое дисперсионное ядерное топливо.

Заключение. Результаты проведенных исследований могут быть использованы при создании технологии плазмохимического синтеза наноразмерных сложных оксидных композиций для дисперсионного МОХ-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. Туманов Ю.Н. Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле: настоящее и будущее. – М.: Физматлит, 2003. – 759 с.
3. Novoselov I.Yu., Karengin A.G., Babaev R.G. Simulation of Uranium and Plutonium Oxides Compounds Obtained in Plasma // AIP Conference Proceedings. – 2018. – Vol. 1938. – P. 1–5.