

**ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ ОКСИДНЫХ КОМПОЗИЦИЙ ДЛЯ ДИСПЕРСИОННОГО
ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

Е.С. Алюков, И.Ю. Новоселов

Научный руководитель: доцент каф. ТФ ФТИ, к.ф.-м.н. А.Г. Каренгин
Национальный исследовательский Томский политехнический университет,
Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, 634050
E-mail: john.judo@mail.ru

**PLASMACHEMICAL SYNTHESIS OF OXIDE COMPOSITIONS FOR DISPERSION NUCLEAR
FUEL**

E.S. Alyukov, I.Yu. Novoselov

Scientific Supervisor: Ass. Prof., PhD A.G. Karengin
Tomsk Polytechnic University, Russia, Tomsk, Lenin str., 30, 634050
E-mail: john.judo@mail.ru

***Abstract.** Article represents results on simulation of plasma treatment of mixed nitric solutions in form of water-salt-organic compositions. Authors defined optimal content of water-salt-organic composition and operational modes providing direct plasmachemical synthesis of oxide compositions for dispersion nuclear fuel. All calculated results were confirmed experimentally.*

Введение. У современной атомной энергетики, использующей оксидное ядерное топливо в реакторах на тепловых нейтронах (РТН) в виде керамики из диоксида урана, обогащенного по изотопу уран-235, наряду с несомненными достоинствами есть и существенные недостатки: низкая теплопроводность, которая ограничивает удельную мощность реактора по температуре плавления; горячая керамика очень хрупка и может растрескиваться; короткий цикл использования; невозможность создания энергетических установок малой (10-100 МВт) и сверхмалой мощности (до 10 МВт); большие расходы на утилизацию отработавшего топлива; ограниченный ресурс изотопа уран-235. Это стало причиной замедления в последние годы развития атомной энергетики на базе РТН и привело к отказу от нее в ряде стран. Одним из перспективных направлений дальнейшего развития атомной энергетики является создание реакторных установок с использованием дисперсионного ядерного топлива (ДЯТ), в котором гранулированные оксидные композиции из ядерных материалов (уран, плутоний, торий и др.) размещают в матрице (алюминий, молибден, нержавеющая сталь и др.) [1]. При использовании изотопов уран-238, торий-232 и плутоний-239 отпадает необходимость в дорогостоящем изотопном обогащении, а цикл использования топлива может быть доведен до 10-15 лет. С учетом ограниченности ресурса изотопа уран-235 использование тория в составе ДЯТ открывает новые перспективы. Применение ДЯТ с использованием тория дает возможность создания малых и сверхмалых энергетических установок для использования в удаленных и труднодоступных районах России, а также на рудниках и карьерах, где после выработки их можно захоронить. Однако у ДЯТ есть и существенные недостатки: паразитное поглощение нейтронов материалом матрицы, что существенно ухудшает нейтронный баланс топлива; необходимость применять высокообогащенные делящиеся материалы, что повышает риск появления

критических масс топлива в сценариях тяжелых аварий с проплавлением активной зоны реактора. Кроме того, применяемая технологическая схема получения гранулированных оксидных композиций для ДЯТ из смесевых нитратных растворов (СНР) методом внешнего гелеобразования (золь-гель процесс) включает целый ряд длительных и трудоёмких стадий и требует значительных количеств химических реагентов [2]. Получение оксидных композиций из СНР с применением плазмы обладает многими важными особенностями, выгодно отличающимися от технологии, основанной на механическом смешении компонентов: возможность получения гомогенного распределения фаз и заданного стехиометрического состава во всем объеме, чистота материала, возможность активно влиять на морфологию частиц [3]. Однако, плазменная обработка только СНР требует огромных энергозатрат (до 2-4 МВт·ч/т). Плазменная обработка СНР в виде диспергированных водно-солеорганических композиций (ВСОК), имеющих необходимую низшую теплотворную способность и адиабатическую температуру горения, дает возможность прямого плазмохимического синтеза в воздушно-плазменном потоке гомогенных композиций с требуемым физико-химическими свойствами и обеспечивает не только существенное снижение затрат электрической энергии на обработку СНР (до 0,1 МВт·ч/т), но и дополнительное получение тепловой энергии для технологических и бытовых нужд (до 2 МВт·ч/т) [4].

Теоретическая часть. Жидкими горючими композициями считают композиции с низшей теплотворной способностью свыше 8,4 МДж/кг [5]:

$$Q_n^p = \frac{(100 - W - A) Q_n^c}{100} - \frac{2,5W}{100},$$

где Q_n^c – низшая теплотворная способность горючего компонента композиции, МДж/кг; W и A – содержание соответственно воды и негорючих минеральных веществ в композиции, %; 2,5 – скрытая теплота испарения воды при 0 °С, МДж/кг.

В результате проведенных расчетов определены оптимальные по составу ВСОК на основе СНР урана и тория, этанола (C_2H_6O) и ацетона (C_3H_6O), имеющих $Q_n^p \geq 8,4$ МДж/кг:

1. При исходном соотношении $U/(U+Th)$ в СНР, равном 0,1

- ВСОК-1 (3,6 % $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$: 39,3 % $Th(NO_3)_4 \cdot 6H_2O$: 23,1% H_2O : 34 % C_2H_6O);
- ВСОК-2 (3,9 % $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$: 42,3 % $Th(NO_3)_4 \cdot 6H_2O$: 24,9 % H_2O : 29 % C_3H_6O).

2. При исходном соотношении $U/(U+Th)$ в СНР, равном 0,3:

- ВСОК-3 (11,3% $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$: 31,6% $Th(NO_3)_4 \cdot 6H_2O$: 23,1% H_2O : 34 % C_2H_6O);
- ВСОК-4 (12,1% $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$: 34,0% $Th(NO_3)_4 \cdot 6H_2O$: 24,9% H_2O : 29 % C_3H_6O).

Для определения оптимальных режимов исследуемого процесса проведены расчёты равновесных составов газообразных и конденсированных продуктов плазменной обработки оптимальных по составу ВСОК в воздушной плазме. Для расчётов использовалась лицензионная программа «TERRA». Расчёты проведены при атмосферном давлении (0,1 МПа), широком диапазоне рабочих температур (300–4000) К и для различных массовых долей воздушного плазменного теплоносителя (10–90) %.

На рисунке 1 представлены характерные равновесные составы основных газообразных (а) и конденсированных (б) продуктов плазменной обработки ВСОК-4 на основе СНР и этанола при массовой доле воздуха 70 % и исходном соотношении $U/(U+Th)$ в СНР, равном 0,3.

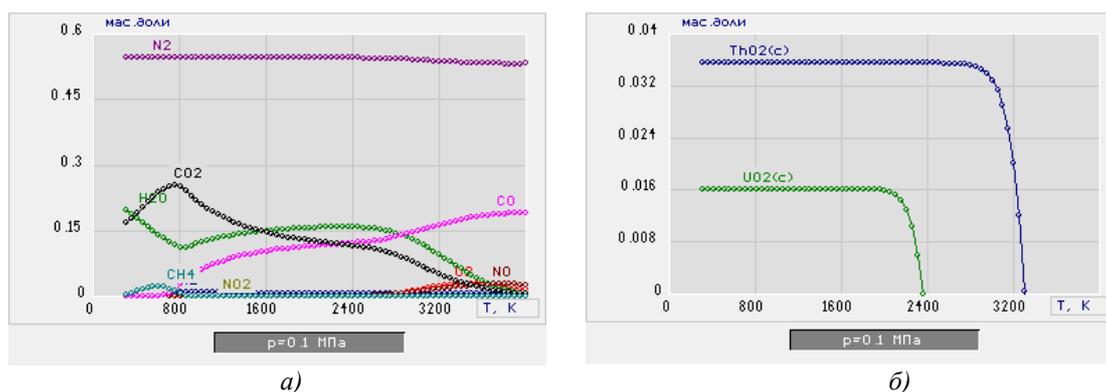


Рис. 1. Влияние температуры на равновесный состав газообразных (а) и конденсированных (б) продуктов плазменной обработки ВСОК-4 в воздушной плазме: (70 % Воздух : 30 % ВСОК-4)

Из анализа равновесных составов следует, что при плазменной обработке ВСОК-4 с массовой долей воздуха 70 % основными газообразными продуктами при температурах до 2000 К являются N₂, CO₂ и H₂O, а в конденсированной фазе образуется требуемая оксидная композиция «UO₂–ThO₂». Отсутствие сажи С(с) и низкое содержание CO, NO и NO₂ указывает на то, что процесс идет в оптимальном режиме с получением в конденсированной фазе требуемой оксидной композиции «UO₂–ThO₂». Изменение исходного соотношения U/(U+Th) в СНР с 0,1 до 0,3 не оказывает существенного влияния на состав газообразных и конденсированных продуктов, а снижение массовой доли воздуха ниже 70 % также не оказывает существенного влияния на состав газообразных продуктов, но приводит к образованию в конденсированной фазе оксидной композиции «U₃O₈–ThO₂».

Заключение. С учётом полученных результатов может быть рекомендованы для практической реализации процесса плазменной обработки СНР урана и тория в воздушной плазме следующие оптимальные режимы: состав композиции ВСОК-4; массовое отношение фаз (70 % Воздух : 30 % ВСОК-4); рабочая температура (1500 ± 100) К; удельные энергозатраты 39,0 МДж/кг.

Результаты проведенных исследований могут быть использованы при создании технологии энергоэффективного плазмохимического синтеза гомогенных оксидных композиций для ДЯТ из смесевых нитратных растворов в виде оптимальных по составу водно-солеорганических композиций.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ:

1. Бойко В.И, Власов В.А., Жерин И.И., Маслов А.А., Шаманин И.В. Торий в ядерном топливном цикле. – М.: Издательский дом «Руда и металлы», 2006. – 360 с.
2. Туманов Ю. Н., Бутылкин Ю. П., Коробцев В. П., Бевзюк Ф. С, Грицюк В.Н., Батарее Г. А., Хохлов В. А., Галкин Н.П. Способ получения урансодержащих смесевых оксидов. – Авт. свидетельство СССР № 904393, 1976.
3. Туманов Ю.Н., Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле. – М.: ФИЗМАТЛИТ, 2003. – 760 с.
4. Karengin A.G., Karengin A.A., Novoselov I.Y., Tundeshev N.V. Calculation and Optimi-zation of Plasma Utilization Process of Inflammable Wastes after Spent Nuclear Fuel Recycling // Advanced Materials Research. – 2014. – Vol. 1040. – P. 433–436.