

УДК 621.387.143: 621.039.54

**ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ И ИССЛЕДОВАНИЕ НАНОРАЗМЕРНЫХ СЛОЖНЫХ
ОКСИДНЫХ КОМПОЗИЦИЙ, ИМИТИРУЮЩИХ УРАН-ТОРИЕВОЕ ДИСПЕРСИОННОЕ
ЯДЕРНОЕ ТОПЛИВО**

А.Е. Тихонов, 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 IMITATING URANIUM-THORIUM DISPERSION NUCLEAR FUEL**

A.E. Tikhonov, 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 uranium-thorium 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, and cerium, having similar physicochemical properties with fissile metals (uranium 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 низкую теплопроводность, высокую хрупкость и склонность к растрескиванию, короткий цикл использования и ограниченный ресурс изотопа уран-235.

При использовании изотопа торий-232 отпадает необходимость в дорогостоящем изотопном обогащении, а цикл использования такого ЯТ может быть доведен до 10-15 лет [1, 2]. При этом прогнозных запасов тория в земной коре в 3-5 раз больше, чем урана, а использование ЯТ на основе урана и тория даст возможность создания сверхмалых (до 10 МВт) и малых (до 100 МВт) энергетических ядерных установок для использования в удаленных и труднодоступных регионах, на рудниках и карьерах. Однако у такого ЯТ остается существенный недостаток – низкая теплопроводность.

Одним из перспективных направлений дальнейшего развития ядерной энергетики в России является создание дисперсионного ЯТ в виде сложных оксидных композиций (СОК), включающих оксиды делящихся металлов (уран, торий), равномерно распределенных в оксидной матрице с высокой теплопроводностью и низким поперечным сечением поглощения нейтронов [3].

Общими недостатками применяемых технологий получения СОК, включающих отдельное получение и механическое смешение оксидов делящихся металлов и матрицы, являются:

многостадийность, неравномерное распределение фаз, необходимость использования большого количества химических реагентов, высокие энерго- и трудозатраты [3].

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 [4]. 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.

К преимуществам плазмохимического синтеза таких СОК из 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, возможность активно влиять на размер и морфологию частиц, гомогенное распределение и требуемый состав фаз, низкие энергозатраты [5].

Экспериментальная часть. Экспериментальные исследования процесса плазмохимического синтеза СОК « $\text{UO}_2\text{-ThO}_2\text{-MgO}$ » 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 органический компонент (ацетон) и смешанные водные нитратные растворы металла матрицы (магний), а также неодим (вместо урана) и церий (вместо тория), имеющих близкие физико-химические свойства с делящимися металлами.

В результате проведенных исследований были определены следующие оптимальные режимы совместной работы высокочастотного генератора ВЧГ8-60/13-01, 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 ($P_{\text{сгр}}=15,0$ 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 (IRE 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 СОК. Для исследования свойств полученных СОК проводились лазерная дифракция водных суспензий СОК, сканирующая электронная микроскопия, БЭТ-анализ и рентгенофазовый анализ полученных порошков СОК.

Показано, что увеличение массовой доли матрицы (MgO) в составе СОК «оксид неодима-оксид церия-оксид магния» от 5 % до 30 % 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, $\alpha = \text{оксид неодима}/(\text{оксид неодима} + \text{оксид церия}) = 0,1$, приводит к увеличению размера частиц СОК в водной

суспензии (D_{50}) после УМО с 10,2 мкм до 14,7 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК ($S_{уд}$) увеличивается с 12,5 м²/г до 13,1 м²/г, а размер кристаллитов в них ($D_{кр}$) снижается с 78 нм до 76 нм.

При повышении частоты f_d с 35 Гц до 50 Гц увеличение массовой доли MgO от 10 % до 30 % в составе СОК (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,5$), приводит к снижению размера частиц СОК в водной суспензии с 9,8 мкм до 9,3 мкм. При этом удельная поверхность порошков СОК увеличивается с 13,1 м²/г до 16,4 м²/г, а размер кристаллитов в них снижается с 68 нм до 65 нм.

Увеличение массовой доли MgO от 10,0 % до 30,0 % в составе СОК (при $f_d = 50$ Гц, $Q_{ов} = 2,8$ кг/с, $\alpha = 0,7$), также приводит к снижению размера образующихся частиц в водной суспензии после УМО с 9,3 мкм до 8,1 мкм. При этом удельная поверхность полученных порошков СОК увеличивается с 13,9 м²/г до 16,8 м²/г, а размер кристаллитов в составе СОК уменьшается с 69 нм до 58 нм.

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 церия-оксид магния», имитирующих уран-ториевое дисперсионное ядерное топливо.

Заключение. Результаты проведенных исследований могут быть использованы при создании технологии плазмохимического синтеза наноразмерных сложных оксидных композиций для уран-ториевого дисперсионного ядерного топлива.

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

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Бойко В.И., Власов В.А., Жерин И.И. и др. Торий в ядерном топливном цикле. – М. Издательский дом «Руда и Металлы», 2006. – 360 с.
2. Алексеев С.В., Зайцев В.А. Торий в ядерной энергетике. – М.: Техносфера, 2014. – 288 с.
3. Алексеев С.В., Зайцев В.А., Толстоухов С.С. Дисперсионное ядерное топливо. – М.: Техносфера, 2015. – 248 с.
4. Туманов Ю.Н. Плазменные и высокочастотные процессы получения и обработки материалов в ядерном топливном цикле: настоящее и будущее. – М.: Физматлит, 2003. – 759 с.
5. 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.