

ФАЗООБРАЗОВАНИЕ В РЕАГИРУЮЩЕЙ СИСТЕМЕ С-Al-TiO₂ С УЧАСТИЕМ ОКСИДОВ ИТТРИЯ, ЦЕРИЯ И ЕВРОПИЯ

Карлина О.К., Климов В.Л., Павлова Г.Ю., Бергман Г.А., Трусов Б.Г.,
Юрченко А.Ю., Дмитриев С.А.

ГВП МосНПО «Радон», 7-й Ростовский пер., 2/14, Москва, 119121, Россия

E-mail: VLKlimov@mail.ru

Самоддерживающаяся экзотермическая реакция $3\text{C}+4\text{Al}+3\text{TiO}_2=3\text{TiC}+2\text{Al}_2\text{O}_3$ является перспективной для иммобилизации отходов облученного реакторного графита^{1,2,3}, содержащего углерод ¹⁴C и нуклиды лантаноидов и актиноидов. В связи с этим проведены термодинамический анализ и экспериментальное исследование поведения оксидов иттрия, церия и европия при осуществлении указанной реакции в системе С – Al – TiO₂.

Для термодинамического анализа использован программный комплекс ТЕРРА⁴, при этом в газовой фазе учитывали O, O₂, C, C₂, C₃, CO, CO₂, C₂O, C₃O₂, Al, Al₂, AlO, AlO₂, Al₂O, Al₂O₂, Al₂O₃, AlC, AlC₂, Al₂C₂, Ti, TiO, TiO₂, Y, YO, YO₂, Y₂O, Y₂O₂, Ce, Ce₂, CeO, Eu, EuO, в конденсированной фазе – C, Al, Al₂O₃, Al₄C₃, Al₂OC, Al₄O₄C, Ti, TiO, TiO₂, Ti₂O₃, Ti₃O₅, Ti₄O₇, TiC, Y, Y₂O₃, Y₃Al₅O₁₂, YAlO₃, Ce, Ce₂O₃, CeO₂, CeAlO₃, Eu, EuO, Eu₂O₃, EuAlO₃, Ce₂C₃, CeC₂, Eu₂C₃, EuC₂. Термодинамические свойства для Al₂OC, Al₄O₄C, Y₃Al₅O₁₂, YAlO₃, CeAlO₃, EuAlO₃, Ce₂C₃, CeC₂, Eu₂C₃, EuC₂ в интервале 298 – 3000 К рассчитаны в настоящей работе, для всех остальных – использованы из базы данных ИВТАНТЕРМО⁵. Согласно расчетам, при добавлении в стехиометрическую смесь 3С+4Al+3TiO₂ оксидов иттрия, церия или европия в продуктах реакции возможно образование Y₃Al₅O₁₂, YAlO₃, CeAlO₃, образование EuAlO₃ и карбидов Ce₂C₃, CeC₂, Eu₂C₃, EuC₂ расчетами не подтверждается.

Проведены эксперименты со стехиометрической смесью 3С+4Al+3TiO₂ с добавками оксида иттрия, церия или европия. Анализ состава конденсированной фазы продуктов реакции выполнен с помощью рентгеновского дифрактометра X'Pert PRO (Philips) с базой данных PDF-2. Установлено, что образовавшаяся в результате реакции пористая керамическая матрица состоит из корунда Al₂O₃ и карбидов титана – кубического TiC и гексагонального Ti₅.73C_{3.72}. В составе керамики найдены также продукты взаимодействия оксида алюминия: с оксидом иттрия Y₂O₃ – иттрий-алюминиевый гранат Y₃Al₅O₁₂ и оксид алюминия и иттрия AlYO₃, с диоксидом церия CeO₂ – алюминаты церия CeAl₁₁O₁₈ и CeAlO₃ и с оксидом европия Eu₂O₃ – аллюминат европия EuAl₁₂O₁₉ и оксид алюминия и европия Eu_{0.54}Al_{10.5}O_{16.4}. Свободный углерод, а также элементарные иттрий, церий и европий в составе образовавшейся керамики не обнаружены. Полученные экспериментальные результаты качественно согласуются с данными термодинамического моделирования.

Авторы признательны к. г.-м. н. Кривоконевой Г.К. за рентгенофазовый анализ образцов.

¹ Климов В.Л. и др. XIV Межд. конф. по хим. термодинам. Тезисы докладов. СПб, 2002, 340.

² Карлина О.К. и др. *Атомная энергия*, 2003, 94(6), 457-463.

³ Дмитриев С.А. и др. *Химич. физика*, 2004, 23(8), 84-88.

⁴ Ожован М.И. и др. *Отчет МосНПО «Радон» № 450*, 2000.

⁵ Гурвич Л.В. *Вестн. АН СССР*, 1983, (3), 54-65.