

## САМОРАСПРОСТРАНЯЮЩИЙСЯ ВЫСОКОТЕМПЕРАТУРНЫЙ СИНТЕЗ КЕРАМИЧЕСКИХ МАТРИЦ НА ОСНОВЕ ОБОГАЩЕННОГО ЦИРКОНИЕМ ПИРОХЛОРА ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ АКТИНИДСОДЕРЖАЩИХ ОТХОДОВ

*К.Б. Подболотов*

*Белорусский государственный технологический университет, Минск, Беларусь*

[podbolotov@belstu.by](mailto:podbolotov@belstu.by)

**Abstract.** The paper presents the results of the study on self-propagating high-temperature synthesis of mineral matrices based on phase of pyrochlore ( $Y_2Ti_2O_7$ ) and zirconia additives for immobilize actinide-containing waste (HLW). Investigations carried out in the system Ti -  $ZrO_2$  - CaO -  $Y_2O_3$  -  $Me_nO_m$  ( $Me = Mo, Fe, Ni, Cr, Mn, Cu$ ) using models HLW. But such oxides as  $MoO_3$ , CuO,  $MnO_2$  and metals reduced from them at high temperatures are exposed to increased ash due to evaporation. There under the perspective is the use of  $Fe_2O_3$  as an oxidant. It is found that the components of HLW do not form an individual crystalline phases and includes as isomorphic impurities in the crystal lattice of pyrochlore, zirconolite and perovskite. A matrix material consisting of two phases – enriched by zirconium pyrochlore, containing HLW elements and metallic iron is produced. Substitution of titanium atoms to zirconium in the pyrochlore lattice is made up to 26 at. %.

Переработка отработавшего ядерного топлива приводит к накоплению большого количества высокоактивных отходов (ВАО), безопасное и долговременное хранение которых представляет сложную научно-техническую проблему. Перспективными с этой точки зрения являются кристаллические матрицы, в которых радионуклиды входят в синтетические высокоустойчивые минералы в виде изоморфных примесей. В ряде работ для иммобилизации актинидсодержащих отходов предлагаются минералоподобные матрицы со структурой типа пирохлора состава  $Y_2Ti_2O_7$ , которые могут включать в свою структуру значительные количества редкоземельных элементов и актинидов, а также продуктов деления и коррозии. Матрицы на основе  $Y_2Ti_2O_7$ , в том числе и синтезированные методом СВС, обладают высокой степенью закрепления актинидов, но не обладают достаточной радиационной стойкостью. Радиационная и химическая стойкость матричного материала значительно увеличиваются в случае введения в состав пирохлора  $Y_2Ti_2O_7$  циркония.

Целью данной работы является исследование процессов фазообразования при получении методом СВС минералоподобных матриц на основе пирохлора  $Y_2Ti_2O_7$ , обогащенного цирконием. В рамках работы для достижения поставленной цели решались конкретные задачи - введение в структуру пирохлора циркония, замена летучего окислителя оксида молибдена  $MoO_3$  на оксид железа  $Fe_2O_3$ , выбор оптимальных составов с помощью термодинамического расчета, СВС и исследование конечного продукта.

Проведен термодинамический анализ в системе Ti -  $ZrO_2$  - CaO -  $Y_2O_3$  -  $Me_nO_m$  ( $Me = Mo, Fe, Ni, Cr, Mn, Cu$ ), определены адиабатические температуры горения, показана возможность синтеза фаз пирохлора и цирконолита при использовании различных окислителей. Однако при высоких температурах оксиды  $MoO_3$ , CuO,  $MnO_2$  и восстановленные из них металлы подвержены повышенному уносу из-за испарения. В соответствии с этим перспективным представляется использование  $Fe_2O_3$  в качестве окислителя, что предотвращает возможные потери элементов ВАО в газовую фазу в виду низкой летучести  $Fe_2O_3$  и более низкой температуры горения. Выявлена зависимость образования и соотношения кристаллических фаз в синтезированной матрице от состава шихты и содержания ВАО. Установлено, что компоненты ВАО не образуют самостоятельных кристаллических фаз и входят в виде изоморфных примесей в кристаллические решетки пирохлора, цирконолита и перовскита. Корректировка шихтового состава позволила получить матричный материал, состоящий из двух фаз - титанатного пирохлора  $Y_2Ti_2O_7$ , содержащего элементы ВАО, и металлического железа. Замещение атомов титана на цирконий в решетке пирохлора в этом случае составило 26 ат. %.