

# ХІМІЧНІ ПЕРЕТВОРЕННЯ В СУМІШІ NaF–ZrF<sub>4</sub> ЗА УЧАСТЮ ТРИФТОРИДІВ ЛАНТАНУ, ІТЕРБІЮ ТА МЕТАЛІЧНОГО ЦИРКОНІЮ

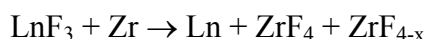
*Савчук Р.М., Компаніченко Н.М., Омельчук А.О.*

Інститут загальної та неорганічної хімії ім. В.І. Вернадського НАН України  
savchuk@ionc.kar.net

В останні роки все більшу зацікавленість науковців викликає можливість використання трансмутаційних технологій для знищення відходів АЕС та збройового плутонію. Вагомою перевагою методів, в основу яких покладені керовані прискорювачами ядерні перетворення в розплавлених сольових композиціях, є забезпечення високого вигорання основного матеріалу (Th, U, Pu) з одночасним безперервним видаленням продуктів поділу без повторної хімічної переробки. Основу паливної солі таких пристроїв складають фториди натрію, цирконію та матеріалу, що ділиться. При роботі реактору відбувається безперервна зміна паливної композиції, що обумовлена накопиченням продуктів ядерних перетворень (зокрема фторидів РЗЕ) та продуктів корозії конструкційних матеріалів, які негативно впливають на нейтронно-енергетичний баланс ядерного реактора, корозійну стійкість конструкційних матеріалів в розплавлених сумішах. В зв'язку з цим дослідження хімічних процесів, що протікають в розплавах, які складають основу паливних сумішей в реакторах-трансмутаторах є актуальним і представляє не лише науковий, але й практичний інтерес.

В даному повідомленні приведені результати дослідження процесів, взаємодії трифторидів лантану та ітербію з металічним цирконієм в розплаві NaF–ZrF<sub>4</sub>, який рекомендовано як основу паливної суміші ядерних реакторів. Дослідження виконані методами диференціально-термічного (ДТА), рентгенофазового (РФ) та хімічного аналізів, а також ІЧ-спектроскопії. Зроблена термодинамічна оцінка взаємодії. ДТА реакційних сумішей здійснювали у вакуумованих сосудах Степанова, скловуглецевих, або корундових тиглях з використанням спеціальних захисних флюсів та інертних газів (аргон) від впливу кисню повітря.

Результати термодинамічних розрахунків вказують на вірогідність протікання взаємодії за схемою:



(де Ln – La, Yb, а  $3 \geq x \geq 1$ ) оскільки зміна вільної енергії Гіббса реакції в інтервалі температур 400–600°C є від'ємною величиною.

Систему NaF–ZrF<sub>4</sub> досліджували при концентраціях (моль %) 40–60 тетрафториду цирконію. Інтервал між сплавами становив (моль %) 4–5. Виявлено, що сполуки, які утворюються, мають конгруентний характер плавлення. Методом ДТА встановлено, що температура плавлення сумішей фторидів натрію та цирконію в співвідношеннях (моль %) 51 : 49 та 58 : 42 мають близьку температуру плавлення яка становить  $520 \pm 5^\circ\text{C}$ , що задовільно узгоджуються з літературними даними. Фізико-хімічними методами аналізу ідентифіковані сполуки розплавів.

Взаємодія між металічним цирконієм та трифторидами лантану, ітербію протікає в інтервалі температур 440–580°C, причому інтенсивність реакції обміну залежить від ступеню дисперсності металічного цирконію і тим вища, чим вища дисперсність відновника.

Фізико-хімічними методами аналізу в кінцевих продуктах взаємодії зафіксовано фази: Yb(La)<sub>1-x</sub>Zr<sub>x</sub>F<sub>3+x</sub> (де  $0,03 \leq x \leq 0,18$ ), NaYb(La)F<sub>4</sub>, Na<sub>3</sub>YbF<sub>6</sub>, а також сполуки фторцирконатів натрію перемінного складу, зокрема Na<sub>2</sub>ZrF<sub>6</sub>, Na<sub>3</sub>ZrF<sub>7</sub>, Na<sub>5</sub>Zr<sub>2</sub>F<sub>13</sub>, та ZrF<sub>2</sub>.

Робота виконана за підтримки гранту НТЦУ № 294.