

<https://doi.org/10.52676/1729-7885-2023-3-33-39>

УДК 54.548.4

ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ДОПИРОВАНИЯ MgO НА ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА КЕРАМИК НА ОСНОВЕ МЕТАЦИРКОНАТА ЛИТИЯ

Д. И. Шлимас^{1,2*}, А. Хаметова¹, А. Л. Козловский^{1,2}

¹ НАО Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

² Институт ядерной физики МЭ РК, Алматы, Казахстан

*E-mail для контактов: shlimas@inp.kz

В работе представлены результаты изучения влияния допирования оксидом магния (MgO) литийсодержащих керамик на основе метацирконата лития (Li_2ZrO_3) на изменение теплофизических параметров керамик. В качестве основного метода для получения керамик, а также осуществления процессов допирования MgO был выбран метод механохимического синтеза с последующим высокотемпературным отжигом при температуре 1300 °С, используемым для инициализации процессов фазовых трансформаций структурного упорядочения. В ходе проведенного рентгенофазового анализа было установлено, что увеличение концентрации допанта MgO выше 0,10 моль приводит к формированию в структуре керамик примесных включений в виде тетрагональной фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$, содержание которой увеличивается при изменении концентрации допанта. В случае концентрации допанта 0,25 моль фазовый состав керамик представляет собой равновероятное распределение двух фаз – моноклинной Li_2ZrO_3 и тетрагональной $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$. В ходе измерения теплофизических параметров было установлено, что формирование фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ в составе керамик приводит к увеличению коэффициента теплопроводности на 5–10%, а в случае равновероятного распределения фаз в двухфазных $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ – Li_2ZrO_3 керамиках увеличение теплопроводности составляет более 25% в сравнении с недопированными керамиками. Увеличение эффективности теплопроводящих свойств для двухфазных керамик обусловлено увеличением скорости фоновой передачи тепла за счет дополнительных межфазных границ, а также увеличения степени структурного упорядочения и плотности керамик.

Ключевые слова: литийсодержащие керамики, бланкетные материалы, теплопроводящие свойства, допирование, фоновые механизмы передачи тепла, структурное упорядочение.

ВВЕДЕНИЕ

В последние несколько лет большое внимание уделяется развитию альтернативных источников энергии в виду ужесточения контроля за экологической ситуацией в мире, истощением природных добываемых энергоресурсов, включая углеводороды, а также стремлением снижения вклада в энергетическом секторе доли углеводородного сырья. В качестве альтернативных источников энергии рассматриваются ветрогенераторы, солнечные батареи, гидроэлектроэнергия. Отдельное внимание уделяется ядерной, термоядерной и водородной энергетике, обладающих более высокой производительностью и энергоэффективностью, а также производят значительно меньше различных вредных веществ и отходов энергетического цикла [1, 2]. При этом, если в области ядерной энергетики основной упор делается на развитие новых типов ядерных реакторов поколения Gen IV, включающее в себя высокотемпературные ядерные реакторы или модульные реакторы, то в термоядерной энергетике основной упор делается на тритиевое топливо. Как известно, тритий в отличие от классического ядерного топлива обладает более высоким энерговыходом, а образующиеся ядерные отходы, обладают значительно меньшим периодом полураспада ($T_{1/2} = 12$ лет) [3, 4], что значительно упрощает их утилизацию и хранение. Сам процесс размножения трития основан на взаимодействии нейтронов с литием в бланкете реактора. Для этой цели

литийсодержащие керамики служат источником трития путем захвата нейтронов и последующего образования трития. Тритий, в свою очередь, может быть извлечен из керамики и использован в качестве топлива или в других приложениях. Для производства трития, как правило, используют литийсодержащие керамики на основе ортосиликата лития (Li_4SiO_4), метатитаната лития (Li_2TiO_3), метацирконата лития (Li_2ZrO_3), оксида лития (Li_2O). Преимущества использования Li_2ZrO_3 , включают высокую термическую стабильность, химическую инертность и способность эффективно удерживать и производить тритий [5–8]. Керамика на основе метацирконата лития обладает высокими термическими свойствами, что позволяет ей выдерживать высокие температуры, характерные для работы ядерных реакторов [9, 10]. При этом следует отметить, что разработка и применение литийсодержащих керамик в ядерных реакторах требует детального изучения и испытаний. Это включает в себя анализ и контроль радиационного воздействия на материалы, оценку их механических свойств, обеспечение долговечности и безопасности эксплуатации, определение теплофизических параметров и их устойчивости в зависимости от циклов испытаний, а также разработку эффективных методов извлечения трития из керамики.

В свою очередь допирование оксидом магния (MgO) литийсодержащих керамических материалов может привести к повышению их устойчивости к

внешним механическим воздействиям, а также изменению теплофизических свойств. Оксид магния (MgO) и оксид лития (Li_2O) являются распространенными компонентами керамических материалов, и их допирование может вносить значительные изменения в свойства материала. Так, к примеру, допирование оксидом магния может увеличить механическую прочность керамического материала, в виду того, что MgO обладает высокой твердостью, что приводит к упрочнению керамик [11–13]. Кроме этого MgO обладает высокой теплопроводностью, его применение может способствовать более эффективному отводу тепла от материала, а изменение коэффициента теплового расширения за счет изменения теплофизических параметров будет полезным при согласовании коэффициента теплового расширения с другими материалами или при создании материалов с определенными термическими свойствами. В ряде случаев концентрация подобных примесных включений приводит к увеличению прочностных или теплофизических свойств керамик, за счет изменения плотности, снижения пористости, а также заполнения пустот и уменьшения размеров зерен. В этой связи одним из важных параметров при анализе зависимостей теплофизических параметров является знание степени структурного упорядочения и фазового состава керамик, так как при больших концентрациях, эффект формирования примесных фаз может оказать существенное влияние на свойства керамик.

Целью данной работы является изучение влияния допирования керамик с вариацией концентраций от 0,05 до 0,25 моль на изменение теплофизических параметров керамик Li_2ZrO_3 оксидом MgO, а также определение различных факторов на изменение механизмов фононного переноса тепла. Интерес к данному направлению исследований обусловлен в первую очередь перспективами изучения фундаментальных аспектов изменения теплофизических характеристик литийсодержащих керамик в зависимости от фазового состава и степени структурного упорядочения. Практическая значимость полученных результатов заключается в определении потенциальных возможностей формирования двухфазных керамик при использовании их в качестве основы для материалов – бланкетов, а также в качестве материалов для размножения трития. Поиск новых типов литийсодержащих керамик для бланкетных материалов обусловлен необходимостью получения уникального сочетания прочностных, теплофизических характеристик.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Синтез литийсодержащих керамик Li_2ZrO_3 , допированных MgO с различной концентрацией допанта, проводился с применением метода механохимического твердофазного перемалывания. В качестве исходных компонентов для синтеза использовались порошки $\text{LiClO}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, ZrO_2 , MgO в заданных стехиометрических соотношениях, химическая чистота которых составила 99,95 %. Реактивы были приобрете-

ны у компании Sigma Aldrich (Sigma Aldrich, США). Концентрация допанта MgO для экспериментов составила от 0,05 до 0,25 моль.

Навеска образцов осуществлялась с применением высокоточных весов VIBRA HT (LOIP, Санкт-Петербург, Россия) (точность 0,001 г). Полученные составы после навески были подвергнуты механохимическому перемалыванию. Перемешивание проводилось с использованием планетарной мельницы PULVERISETTE 6 classic line (Fritsch, Берлин, Германия) при скорости помола 400 об/мин в течение 30 минут.

После перемалывания полученные смеси были подвергнуты термическому спеканию в муфельной печи RUS-universal (RUS-universal, Москва, Россия). Отжиг проводился в муфельной печи при температуре 1300 °C в течение 8 часов с последующим остыванием в течение 24 часов, скорость нагрева составила 10 °C/мин, контроль за температурой был осуществлен с применением термопар, в качестве нагревательных элементов использовались тэны из SiC. На рисунке 1 представлена схема, отображающая основные этапы изготовления литийсодержащих керамик, включающая в себя механохимический синтез, термический отжиг и последующую запрессовку образцов с целью изготовления таблеток для испытаний. Использование данной технологической схемы получения литийсодержащих керамик позволяет получать высокопрочные, структурно-упорядоченные керамики, с управляемым фазовым составом и прочностными характеристиками.



Рисунок 1. Схема получения литийсодержащих керамик

Анализ вариации фазового состава керамик при изменении концентрации допанта, а также оценка структурных особенностей и степени структурного упорядочения была выполнена с применением метода рентгеновской дифракции. Получение дифрактограмм было выполнено в геометрии Брегг-Брентано на порошковом дифрактометре D8 Advance ECO (Bruker, Берлин, Германия). Измерения проводились для серии образцов (не менее 5 образцов в серии) с

целью определения погрешности измерений, а также установления сходимости результатов и повторяемости предложенной методики синтеза керамик. Для расчетов использовалась методика, предложенная в работах [14, 15]. Функции псевдо-Фойгта, применяемые для аппроксимации профиля рентгеновских пиков на дифрактограмме [16]:

$$PV(x, x_0, \eta, b_L, b_G, A) = A[(1 - \eta) \cdot G(x, x_0, b_G) + \eta \cdot L(x, x_0, b_L)],$$

$$G(x, x_0, b_G) = \exp\left[-\frac{(x - x_0)^2}{2b_G^2}\right], \quad (1)$$

$$L(x, x_0, b_L) = \frac{1}{1 + \left(\frac{x - x_0}{b_L}\right)^2}$$

где x – переменная, соответствующая углу отражения 2θ ; x_0 – задает положение максимума функции; η – удельная доля функции Лоренца; A – нормирующий множитель; b_G и b_L – параметры функций Гаусса $G(x, x_0, b_G)$ и Лоренца $L(x, x_0, b_L)$. В качестве критерия такого соответствия было использовано среднеквадратичное отклонение, минимальное значение которого при вариации этих параметров, соответствует их оптимальному набору:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_i (PV(x, x_0, \eta, b_L, b_G, A)_i - I_i)^2}{n}}, \quad (2)$$

где $PV(x, x_0, \eta, b_L, b_G, A)_i$ – значение функции псевдо-Фойгта, I_i – значение экспериментальной интенсивности, i – номер точки профиля рефлекса, n – число точек в профиле.

Для определения влияния допанта на изменение теплофизических свойств керамик была применена стандартная методика определения коэффициента теплопроводности. Измерение разности температур проводилось с использованием прибора КИТ-800 (Москва, Россия). Измерение коэффициента теплопроводности проводилось с использованием метода определения разности температур при продольном тепловом потоке через образец при нагреве. Теплопроводящие характеристики оценивались с использованием формулы (3), позволяющей определить величину коэффициента теплопроводности.

$$\lambda = \frac{q\delta}{t_{c1} - t_{c2}}, \quad (3)$$

где q – плотность теплового потока, Вт/м²; t_{c1} и t_{c2} – температуры образца с обеих сторон, К; δ – толщина образца.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Как известно, использование различных допантов, в частности оксидных соединений, таких как оксид магния, оксид иттрия, оксид кальция, позволяет увеличить степень структурного упорядочения, обу-

словленного эффектом частичного замещения или внедрения, а также заполнением вакансий и пустот. При этом, в случае больших концентраций оксидных допантов, может наблюдаться эффект формирования фаз замещения или сложных оксидов с перовскитоподобной или шпинельной структурой.

Согласно данным рентгенофазового анализа полученных образцов установлено, что использование предложенных условий синтеза позволяет получить однофазные керамики с фазой Li_2ZrO_3 с моноклинным типом кристаллической решетки. В случае добавления в состав керамик допанта MgO с концентрацией 0,05 моль происходит увеличение степени структурного упорядочения, связанного с уплотнением кристаллической структуры, а также снижением деформационных искажений. При концентрации допанта выше 0,10 моль в составе керамик наблюдается формирование $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ с тетрагональным типом кристаллической решетки. Установлено, что в случае концентрации 0,25 моль содержание фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ составляет приблизительно 50%, что свидетельствует о формировании двухфазных керамик с равновероятным распределением двух фаз. Равновероятное распределение фаз в структуре керамик приводит к их уплотнению и уменьшению размеров кристаллитов с 70–80 нм до 40–50 нм, что свидетельствует об увеличении межфазных и межзеренных границ в составе керамик. В случае же недопированных керамик размер кристаллитов составляет более 80 нм, а плотность керамик составляет менее 3,9 г/см³, что приводит к образованию достаточно большого количества пустот в структуре, обуславливающих высокую пористость кристаллической структуры.

На рисунке 2 представлены результаты оценки степени структурного упорядочения синтезированных керамик в зависимости от концентрации допанта MgO.

Как видно из представленных данных, изменение концентрации допанта MgO в составе керамик приводит к двухстадийному изменению степени структурного упорядочения. Первая стадия характерна для малых концентраций допанта MgO и соответствует увеличению степени структурного упорядочения в сравнении с недопированным образцом на 5–10%, что свидетельствует о частичном снятии структурных искажений и релаксации деформационных включений в составе керамик. Вторая стадия характерна для процессов фазовых трансформаций типа $\text{Li}_2\text{ZrO}_3 \rightarrow \text{Li}_2\text{ZrO}_3/\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ и характеризуется малыми изменениями степени структурного упорядочения. Такое изменение обусловлено в первую очередь тем, что процессы фазовых трансформаций сопровождаются деформационными искажениями кристаллической структуры за счет формирования примесных включений и характерных межфазных границ, что в свою очередь не дает возможности снизить концентрацию дефектных включений в составе керамики при увеличении концентрации примесной фазы.

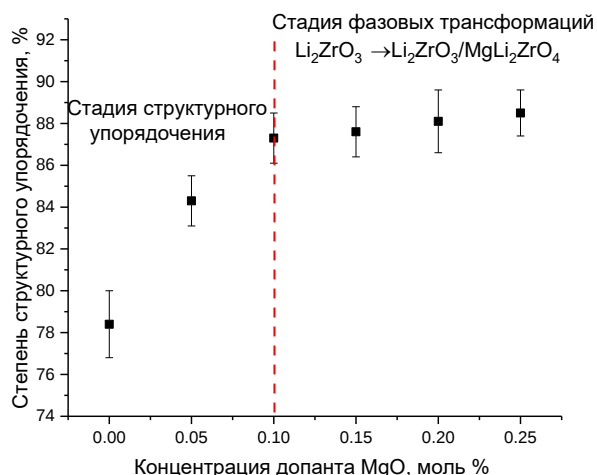


Рисунок 2. Результаты оценки степени структурного упорядочения синтезированных литийсодержащих керамик в зависимости от концентрации допанта MgO

На рисунке 3 представлены результаты оценки изменения коэффициента теплопроводности синтезированных литийсодержащих керамик в зависимости от концентрации допанта MgO. В случае исходных недопированных Li_2ZrO_3 керамик, коэффициент теплопроводности составляет 1,73 Вт/м·К, что соотносится с результатами литературных данных для литийсодержащих керамик на основе метацирконата лития [17, 18]. Анализ полученных зависимостей показал, что добавление допанта MgO в состав керамик при концентрациях 0,05 и 0,10 моль не приводит к значительному увеличению коэффициента теплопроводности, что свидетельствует о том, что структурное упорядочение, наблюдаемое для данных керамик, не оказывает существенного влияния на изменение теплофизических свойств и фоновые механизмы передачи тепла. Известно, что MgO обладает более высокой теплопроводностью (30–60 Вт/м·К), чем Li_2ZrO_3 , для которого величина теплопроводности практически на 2 порядка ниже, однако малая концентрация допанта не оказывает влияния на изменение теплофизических параметров.

В случае, когда в составе керамик наблюдается формирование примесной фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$, происходит увеличение коэффициента теплопроводности, которое хорошо коррелирует с увеличением вклада фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$. В случае равновероятного распределения двух фаз в составе керамик коэффициент теплопроводности составляет 2,23 Вт/м·К, что в 1,3 раза выше аналогичной величины для однофазных Li_2ZrO_3 керамик.

На основе полученных данных коэффициента теплопроводности была рассчитана эффективность коэффициента теплопроводности, результаты которого представлены на рисунке 4. Расчет проводился путем сравнительного анализа значений коэффициентов теплопроводности допированных образцов со значениями коэффициентов для недопированных керамик, представляющих собой моноклинную структуру

Li_2ZrO_3 . Величина эффективности теплопроводности, представленная на рисунке 4, выражена в процентном соотношении, величина погрешности измерений была определена для серии образцов, с целью отражения точности измерений, а также установления сходимости данных в ходе проведенных экспериментальных работ.

Анализ эффективности увеличения теплопроводности показал следующее. В случае стадии структурного упорядочения, характерной для малых концентраций допанта, эффективность увеличения теплопроводности составляет менее 1%, в то время как для керамик, в составе которых формируется примесная фаза $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$, эффективность теплопроводности резко увеличивается. Такое увеличение эффективности теплопроводящих свойств можно объяснить следующими факторами.

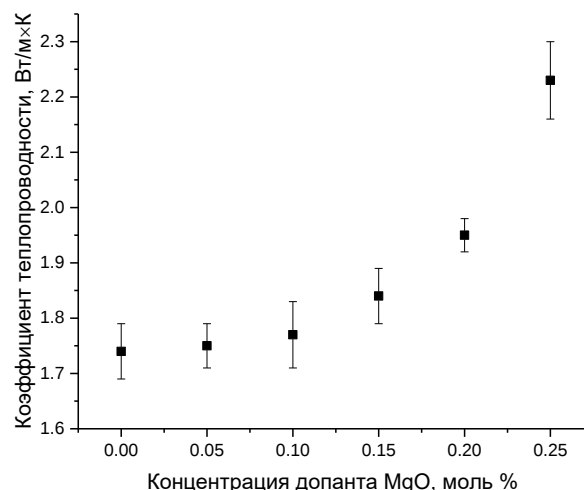


Рисунок 3. Результаты оценки изменения коэффициента теплопроводности в зависимости от концентрации допанта MgO в составе литийсодержащих керамик

Во-первых, наличие примесных включений и межфазных границ может способствовать рассеянию фононов, что может повысить теплопроводность материала. В свою очередь, фононы, являющиеся квантами колебаний решетки материала, могут испытывать рассеяние на границах раздела различных фаз, что приводит к более эффективной передаче тепла.

Во-вторых, примесные включения могут предоставлять дополнительные каналы для фонованого транспорта в материале. Это способствует увеличению плотности состояний фононов и, следовательно, увеличению теплопроводности. Примесные фазы могут создавать дополнительные фоновые моды, которые могут переносить тепло в материале. Это может изменять общий спектр фонованных мод и вносить вклад в фоновые механизмы передачи тепла.

В-третьих, наличие межфазных границ может способствовать переносу фононов между различными областями материала. Это приводит к созданию дополнительных каналов для передачи тепла и уве-

личивает теплопроводность. Межфазные границы могут действовать как места рассеяния фононов, что приводит к более эффективной передаче тепла. Рассеяние фононов на границах раздела фаз может изменять их энергию, направление движения и скорость, влияя на фононные механизмы теплопередачи. Примесные фазы и межфазные границы могут изменять фононные свойства материала, такие как длины свободного пробега фононов, времена релаксации и спектры фононных мод. Это приводит к изменению фононных механизмов передачи тепла и, следовательно, увеличению теплопроводности.

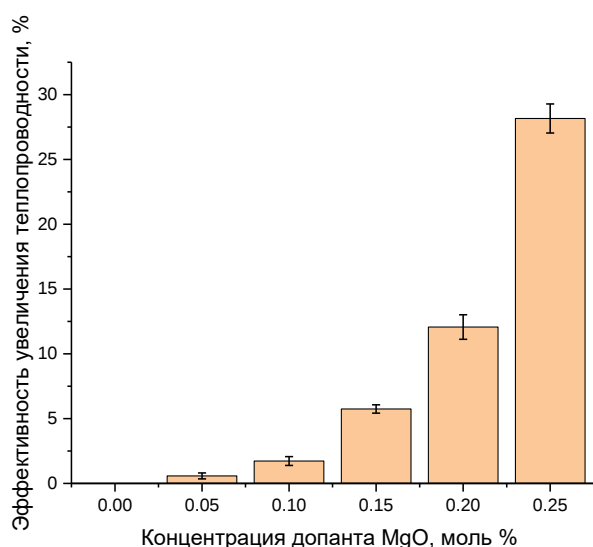


Рисунок 4. Результаты оценки эффективности увеличения коэффициента теплопроводности в зависимости от концентрации допанта

Установлено, что наличие примесной фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ и межфазных границ оказывает значительное влияние на увеличение теплопроводности и фононные механизмы передачи тепла в материалах, в то время как структурное упорядочение при малых концентрациях допанта не оказывает значимого влияния на увеличение теплопроводности.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

С применением метода механохимического синтеза, совмещенного с термическим отжигом, были получены литийсодержащие керамики на основе Li_2ZrO_3 , допированные MgO. С использованием метода рентгенофазового анализа установлена динамика фазовых трансформаций, заключающаяся в формировании двухфазных керамик типа $\text{Li}_2\text{ZrO}_3/\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$. Полученные результаты оценки коэффициента теплопроводности показали, что основные изменения теплофизических параметров связаны в первую очередь с формированием примесных включений в виде тетрагональной фазы $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$, формирование которой приводит к увеличению теплопроводности на 5–10%. В случае равновероятного распределения двух фаз в составе керамик увеличе-

ние теплопроводности составляет более чем 15 %. В случае же малых концентраций допанта MgO, приводящих к увеличению степени структурного упорядочения увеличение теплопроводности составляет менее 1%, что свидетельствует о малом вкладе в фононные механизмы передачи тепла структурного упорядочения.

Полученные результаты в дальнейшем могут быть использованы при проектировании бланкетных материалов для производства трития, что позволит учесть фактор повышенного теплообмена в сравнении с традиционными керамиками на основе метацирконата лития, и снизить тепловой перегрев в активной зоне при производстве трития.

В целом можно заключить, что литийсодержащие керамики на основе метацирконата лития имеют потенциал для использования в ядерных реакторах, но требуют продолжения дальнейших исследований перед их широким применением. Исследования в данном направлении будут направлены на изучение устойчивости данных типов керамик к радиационно-индуцированным повреждениям, вызывающим структурные искажения, способными оказать негативное влияние на устойчивость к радиационному охрупчиванию и снижению прочностных свойств.

Данное исследование выполнено в рамках грантового финансирования Комитета науки Министерства науки и высшего образования РК № AP14870105.

ЛИТЕРАТУРА / REFERENCES

- Khan I. et al. Alternate energy sources and environmental quality: The impact of inflation dynamics // *Gondwana Research*. – 2022. – Vol. 106. – P. 51–63.
- Çakar N. D. et al. Nuclear energy consumption, nuclear fusion reactors and environmental quality: The case of G7 countries // *Nuclear Engineering and Technology*. – 2022. – Vol. 54, №. 4. – P. 1301–1311.
- Barabash V. et al. Materials challenges for ITER—Current status and future activities // *Journal of Nuclear Materials*. – 2007. – Vol. 367. – P. 21–32.
- Janeschitz G. et al. Plasma-wall interaction issues in ITER // *Journal of Nuclear Materials*. – 2001. – Vol. 290. – P. 1–11.
- Tanabe T. (ed.). Tritium: Fuel of fusion reactors. – Tokyo: Springer Japan, 2017. – P. 1–30.
- Stefanelli E. et al. Li_4SiO_4 breeder pebbles fabrication by a sol-gel supported drip casting method // *Fusion Engineering and Design*. – 2022. – P. 113014–113020.
- Lulewicz J. D. et al. Behaviour of Li_2ZrO_3 and Li_2TiO_3 pebbles relevant to their utilization as ceramic breeder for the HCPB blanket // *Journal of nuclear materials*. – 2000. – Vol. 283. – P. 1361–1365.
- Lee Y. L. et al. Density functional theory study of the point defect energetics in $\gamma\text{-LiAlO}_2$, Li_2ZrO_3 and Li_2TiO_3 materials // *Journal of Nuclear Materials*. – 2018. – Vol. 511. – P. 375–389.
- Miller J. M., Verrall R. A. Performance of a Li_2ZrO_3 sphere-pac assembly in the CRITIC-II irradiation experiment // *Journal of nuclear materials*. – 1994. – Vol. 212. – P. 897–901.

10. Kordatos A. et al. Defect processes in Li_2ZrO_3 : insights from atomistic modelling // Journal of Materials Science: Materials in Electronics. – 2017. – Vol. 28, No. 16. – P. 11789–11793.
11. Anokhina I. et al. Electrical Properties and Chemical Resistance of the Composites $(1-x) \text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7 \cdot x \text{MgO}$ in Li-Containing Chloride Melts // Processes. – 2023. – Vol. 11, No. 4. – P. 1217.
12. Nishio R. et al. Reduction of MHD pressure drop by electrical insulating oxide layers in liquid breeder blanket of fusion reactors // Nuclear Materials and Energy. – 2023. – Vol. 34. – P. 101382.
13. Manchanda V. K. Thorium as an abundant source of nuclear energy and challenges in separation science // Radiochimica Acta. – 2023. – Vol. 111, No. 4. – P. 243–263.
14. Rebuffi L. et al. MCX: a Synchrotron Radiation Beamline for X-ray Diffraction Line Profile Analysis // Zeitschrift für anorganische und allgemeine Chemie. – 2014. – Vol. 640. – No. 15. – P. 3100–3106.
15. Pinto C. C., Campelo P. H., Michielon de Souza S. Rietveld-based quantitative phase analysis of B-type starch crystals subjected to ultrasound and hydrolysis processes // Journal of Applied Polymer Science. – 2020. – Vol. 137. – No. 47. – P. 49529.
16. Puerta J., Martin P. Three and four generalized Lorentzian approximations for the Voigt line shape // Applied optics. – 1981. – Vol. 20. – No. 22. – P. 3923–3928.
17. Hoshino Tsuyoshi. Pebble fabrication of super advanced tritium breeders using a solid solution of $\text{Li}_2 + x\text{TiO}_3 + y$ with Li_2ZrO_3 . // Nuclear Materials and Energy. – 2016. – Vol. 9. – P. 221–226.
18. Leys, O., Kolb, M. H. H., Pucci, A., & Knitter, R. Study of lithium germanate additions to advanced ceramic breeder pebbles. // Journal of Nuclear Materials. – 2019. – Vol. 518. – P. 234–240.

ЛИТИЙ МЕТАЦИРКОНАТ НЕГІЗІНДЕГІ КЕРАМИКАЛЫҚ ҚАСИЕТТЕРДІҢ ТЕРМОФИЗИКАЛЫҚ ҚАСИЕТТЕРІНЕ MgO ДОПИНГІНІҢ ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУ

Д. И. Шлимас^{1,2*}, А. Хаметова¹, А. Л. Козловский^{1,2}

¹ *Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті КеАҚ, Астана, Қазақстан*

² *ҚР ЭМ Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан*

**Байланыс үшін E-mail: shlimas@inp.kz*

Жұмыста литий метацирконат (Li_2ZrO_3) негізіндегі литийі бар керамиканың магний оксидімен (MgO) қоспалаудың керамиканың термофизикалық параметрлерінің өзгеруіне әсерін зерттеу нәтижелері берілген. Керамика алу үшін, сонымен қатар MgO қоспалау процестерін орындау үшін негізгі әдіс ретінде құрылымдық реттіліктен фазалық түрлену процестерін бастау үшін қолданылатын механикалық химиялық синтез, содан кейін 1300°C температурада жоғары температурада жасыту әдісі таңдалды. Зерттеулер барысында MgO қоспасының концентрациясының $0,10$ мольден жоғары жоғарылауы керамика құрылымында $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ тетрагональды фазасы түріндегі қоспа қосындыларының түзілуіне әкелетіні анықталды, олардың құрамы ұлғайған сайын артады. қоспаның концентрациясының жоғарылауы. Қоспа концентрациясы $0,25$ моль болған жағдайда керамиканың фазалық құрамы екі фазаның, моноклиникалық Li_2ZrO_3 және тетрагональды $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ тең ықтималды таралуы болып табылады. Термофизикалық параметрлерді өлшеу барысында керамиканың құрамында $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ фазасының түзілуі жылу өткізгіштіктің $5\text{--}10\%$ -ға артуына, ал фазалардың тең ықтимал таралуы жағдайында екі- фазалық $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4\text{--Li}_2\text{ZrO}_3$ керамика, қоспаланбаған керамикамен салыстырғанда жылу өткізгіштіктің жоғарылауы 25% -дан астам. Екі фазалы керамика үшін жылу өткізгіштік қасиеттерінің тиімділігінің артуы қосымша фазааралық шекаралардың есебінен фондық жылу беру жылдамдығының жоғарылауымен, сонымен қатар керамиканың құрылымдық реттілік дәрежесі мен тығыздығының жоғарылауымен байланысты.

Түйін сөздер: құрамында литий бар керамика, көрне материалдары, жылу өткізгіштік қасиеттері, қоспалау, фондық жылу алмасу механизмдері, құрылымдық реттілік.

STUDY OF THE INFLUENCE OF MgO DOPING ON THE THERMOPHYSICAL PROPERTIES
OF CERAMICS BASED ON LITHIUM METAZIRCONATE

D. I. Shlimas^{1,2*}, A. Khametova¹, A. L. Kozlovskiy^{1,2}

¹ L.N. Gumilyov Eurasian National University, Astana, 010008, Kazakhstan

² Institute of Nuclear Physics ME RK, Almaty, Kazakhstan

*E-mail for contacts: shlimas@inp.kz

The paper presents the results of studying the effect of doping with magnesium oxide (MgO) of lithium-containing ceramics based on lithium metazirconate (Li_2ZrO_3) on the change in the thermophysical parameters of ceramics. The method of mechanochemical synthesis followed by high-temperature annealing at a temperature of 1300 °C, used to initiate the processes of phase transformations from structural ordering, was chosen as the main method for obtaining ceramics, as well as for performing MgO doping processes. In the course of the studies, it was found that an increase in the concentration of the MgO dopant above 0.10 mol leads to the formation of impurity inclusions in the structure of ceramics in the form of a tetragonal phase $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$, the content of which increases with an increase in the concentration of the dopant. In the case of a dopant concentration of 0.25 mol, the phase composition of ceramics is an equiprobable distribution of two phases, monoclinic Li_2ZrO_3 and tetragonal $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$. In the course of measuring thermophysical parameters, it was found that the formation of the $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ phase in the composition of ceramics leads to an increase in the thermal conductivity by 5–10%, and in the case of an equiprobable distribution of phases in two-phase $\text{MgLi}_2\text{ZrO}_4$ – Li_2ZrO_3 ceramics, the increase in thermal conductivity is more than 25% in comparison with undoped ceramics. An increase in the efficiency of heat-conducting properties for two-phase ceramics is due to an increase in the rate of phonon heat transfer due to additional interfacial boundaries, as well as an increase in the degree of structural ordering and density of ceramics.

Keywords: lithium-containing ceramics, blanket materials, heat-conducting properties, doping, phonon heat transfer mechanisms, structural ordering.