
КЕРАМИЧЕСКИЕ КОМПОЗИТНЫЕ МАТРИЦЫ НА ОСНОВЕ СИСТЕМЫ $\text{LaPO}_4\text{--ZrO}_2$: ПОЛУЧЕНИЕ И СВОЙСТВА

© 2022 г. Л. П. Мезенцева^{1, *}, А. В. Осипов¹, В. Л. Уголков¹,
А. А. Акатов², Л. А. Коптелова¹

¹Институт химии силикатов им. И.В. Гребенщикова РАН,
наб. Макарова, 2, Санкт-Петербург, 199034 Россия

²Санкт-Петербургский государственный технологический институт (технический университет),
Московский пр., 26, Санкт-Петербург, 190013 Россия

*e-mail: la_mez@mail.ru

Поступила в редакцию 01.07.21 г.

После доработки 31.07.21 г.

Принята к публикации 06.08.21 г.

Рассмотрен оригинальный подход к использованию керамических композитов в качестве матриц, предназначенных для отверждения и захоронения актинид-редкоземельной фракции высокоактивных отходов (ВАО). Керамические композиты получали спеканием наноразмерных порошков $(1 - x)\text{LaPO}_4\text{--}x\text{ZrO}_2$, предварительно прокаленных при 850°C, с использованием нестабилизированного оксида циркония. Прокаленные порошки подвергали ступенчатому спеканию в интервале температур 1000–1300°C и при 1600°C для получения керамических композитных матриц $(1 - x)\text{LaPO}_4\text{--}x\text{ZrO}_2$. Проведены опыты по выщелачиванию керамических образцов, спеченных при температуре 1600°C. Рассчитаны скорости выщелачивания ионов La^{3+} и Zr^{4+} из керамических образцов в дистиллированной воде; проведено сравнение результатов с ранее полученными данными для аналогичных матриц в концентрированном растворе хлорида и сульфата натрия. Представлены результаты исследования керамических матриц до и после выщелачивания методами РФА и электронной микроскопии.

Ключевые слова: керамические композитные матрицы $(1 - x)\text{LaPO}_4\text{--}x\text{ZrO}_2$, рентгенофазовый анализ, поверхность разрушения, скорость выщелачивания

DOI: 10.31857/S013266512106024X

ВВЕДЕНИЕ

Перспективы использования керамических материалов на основе фосфатов в качестве химически стабильных и радиационно стойких матриц для безопасного захоронения радиоактивных отходов рассматривались в различных публикациях [1–9]. Известно, что они отвечают наиболее важным требованиям, выдвигаемым к таким матрицам, а именно: обладают совместимостью с геологической средой, устойчивостью к природным жидким средам, радиационной стойкостью (в т.ч. к эффектам самооблучения) [9–11]. В работе [12] были исследованы термодинамически стабильные твердые растворы $\text{La}_{1-x}\text{Ln}_x\text{PO}_4$ ($\text{Ln} = \text{Eu}, \text{Gd}; 0 < x < 1$) со структурой монацита во всем диапазоне концентраций. Кроме того, с помощью термодинамического моделирования была выполнена оценка термодинамических параметров и долгосрочной стабильности керамических матриц на основе твердого раствора типа монацита, предназначенных для включения радионуклидов с целью захоронения радиоактивных отходов

[8, 9, 13]; в частности, монацит $GdPO_4$ был предложен как идеально подходящий для иммобилизации актинидов с относительно низкой мощностью дозы [13].

В качестве матриц для отходов рассматривалось несколько типов материалов – стекло, стеклокерамика и керамика, в том числе керамические композиты с добавками ZrO_2 [14, 15]. Авторы работы [14] отметили ZrO_2 как хорошо известную добавку для повышения химической стойкости силикатного стекла; значительная концентрация ZrO_2 присутствовала в составе композиций для остекловывания радиоактивных отходов.

Более того, добавление оксида циркония в композиции для остекловывания радиоактивных отходов, даже в небольшом количестве, как подчеркивалось в [16], существенно влияет на их физические свойства. В частности, добавление оксида циркония снижает начальную скорость растворения, но способствует растворению в долгосрочной перспективе. Авторы связали это явление с изменением защитных свойств, таких как пористость, измененных слоев в стеклянной матрице.

Однако стекло и стеклокерамика являются метастабильными материалами с точки зрения термодинамики. Поэтому керамика, особенно минералоподобная керамика, считается более перспективной для захоронения высокоактивных радиоактивных отходов (ВАО).

По мнению авторов [17], композитная, а не однофазная, керамика будет более востребована для этих целей из-за сложности составов жидких отходов (которые будут подвергаться отверждению). Авторы [17] считают, что фазы, сегрегированные по границам зерен, благоприятны для иммобилизации в них примесей радионуклидов. Более того, в этом отношении каждая часть композита может независимо включать радионуклиды, т.е. являться матрицей. Например, авторы [18, 19] указали на способность керамики на основе ZrO_2 образовывать твердые растворы с ионами Pu, Am или Gd, Y.

Настоящая работа была стимулирована публикацией [17] и явилась продолжением ранее опубликованной в журнале “Физика и химия стекла” в 2019 г. (см. Л.П. Мезенцева и др.). В рамках указанного исследования керамические композитные матрицы были получены спеканием наноразмерных порошков $0.8LaPO_4-0.2Al_2O_3$, $0.8LaPO_4-0.2Y_2O_3$ и $0.8LaPO_4-0.2ZrO_2$ при температурах от 1000 до 1600°C. Было показано, что скорость выщелачивания ионов La^{3+} , Al^{3+} , Y^{3+} и Zr^{4+} из керамических матричных композитов в концентрированных водных растворах NaCl и Na_2SO_4 низкая.

В настоящем исследовании предпринята попытка изучения керамических композитных матриц на основе системы $LaPO_4-ZrO_2$ в широком диапазоне концентраций, а также оценки их поведения в процессе выщелачивания. С этой целью были синтезированы наноразмерные порошки $LaPO_4 \cdot nH_2O-ZrO(OH)_2$ для получения керамических композиционных материалов (матриц) $(1-x)LaPO_4-xZrO_2$.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Синтез и исследование порошков-прекурсоров $(1-x)LaPO_4 \cdot nH_2O-xZrO(OH)_2$

Для получения керамических композитов $(1-x)LaPO_4-xZrO_2$ была использована оригинальная методика синтеза порошков-прекурсоров, разработанная ранее для ортофосфатов редкоземельных элементов и в дальнейшем для композиций на их основе (см. работу Л.П. Мезенцевой и др. в 2017 г. в журнале “Физика и химия стекла”).

Наноразмерные порошки-прекурсоры $(1-x)LaPO_4 \cdot nH_2O-xZrO(OH)_2$, где $x = 0.0, 0.2, 0.3, 0.5, 0.7, 0.8$ и 1.0 , были синтезированы золь-гель методом. Компоненты ($LaPO_4 \cdot nH_2O$ и $ZrO(OH)_2$) были получены отдельно обратным осаждением; затем полученные коллоидные растворы $LaPO_4 \cdot nH_2O$ и $ZrO(OH)_2$ (золи) смешивали и добавляли раствор аммиака для получения соответствующих композиций в виде гелей [20].

Исходными реагентами служили La_2O_3 (Ла-1, ТУ 48-194-81, 99.99%), $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ (марки “х. ч.”, 99.0%), $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (марки “х. ч.”, 99.5%), азотная кислота (марки “х. ч.”, 70%), водный раствор аммиака (марки “х. ч.”, 25%) и дистиллированная вода.

Для рентгенофазового анализа (РФА) порошков использовали дифрактометр ДРОН-3 (Россия). Параметры записи были следующими: CuK_α -излучение ($\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$), 38 кВ, Ni-фильтр, постоянная времени 1, скорость сканирования 1 град/мин.

Термический анализ порошков-прекурсоров методом ДСК/ТГ на приборе STA 4429CD (NETZSCH) Simultaneous Thermal Analyzer показал потерю воды продуктами синтеза и разложение $\text{ZrO}(\text{OH})_2$ в интервале температур от комнатной до 800°C и образование вследствие этого композиций $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ (см. [20]), а также публикацию Л.П. Мезенцевой и др. 2021 г. в журнале “Физика и химия стекла”).

Получение наноразмерных порошков $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ и их спекание

Исходные некомпактированные порошки $(1-x)\text{LaPO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}-x\text{ZrO}(\text{OH})_2$ предварительно прокаливали в соответствии с результатами ДСК/ТГ при температуре 850°C в течение 2 ч для обезвоживания продуктов и разложения $\text{ZrO}(\text{OH})_2$ с одновременным сохранением высокой дисперсности образующихся порошков $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$.

После измельчения агломератов в вибрационной мельнице порошки $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ прессовали в таблетки под давлением 8–10 МПа и спекали на воздухе в интервале температур $1000\text{--}1300^\circ\text{C}$ в течение 24 ч, а затем при 1600°C в течение 1 ч.

Исследование керамических композитных матриц $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$

Измельченные керамические образцы после спекания анализировали методом РФА.

СЭМ-изображения поверхностей разрушения керамических матриц до и после выщелачивания были получены с помощью электронного микроскопа FEI Quanta 200 SEM (США).

Эксперимент по выщелачиванию в дистиллированной воде

Химическая стабильность композитов может быть оценена с помощью эксперимента по выщелачиванию в дистиллированной воде. Для этого порошки $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ прессовали в кубики объемом 1 см^3 под давлением 8–10 МПа, после чего их последовательно спекали при 1000 , 1200 , 1300°C (24 ч) и 1600°C (1 ч). Керамические кубики помещали в пластиковые контейнеры и заливали 50 мл контактного раствора (дистиллированной воды). Температура испытания составляла $25 \pm 3^\circ\text{C}$; контактный раствор меняли на 1, 3, 7, 10, 14, 21 и 27 сут. Концентрации ионов La^{3+} и Zr^{4+} в растворе определяли методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой (ICP-MS). Измерения ICP-MS проводили во Всероссийском научно-исследовательском геологическом институте им. А.П. Карпинского (Санкт-Петербург, Россия).

На основании полученных концентраций ионов в контактном растворе были рассчитаны скорости выщелачивания керамических матриц по следующей формуле:

$$R = cV/(wSt),$$

где R – скорость выщелачивания компонента, $\text{г}/(\text{см}^2 \text{ сут})$; c – концентрация компонента в контактном растворе, $\text{г}/\text{л}$; V – объем контактного раствора, л ; w – массовая доля компонента в образце; S – геометрическая площадь открытой поверхности образца, см^2 ; t – продолжительность периода выщелачивания, сут .

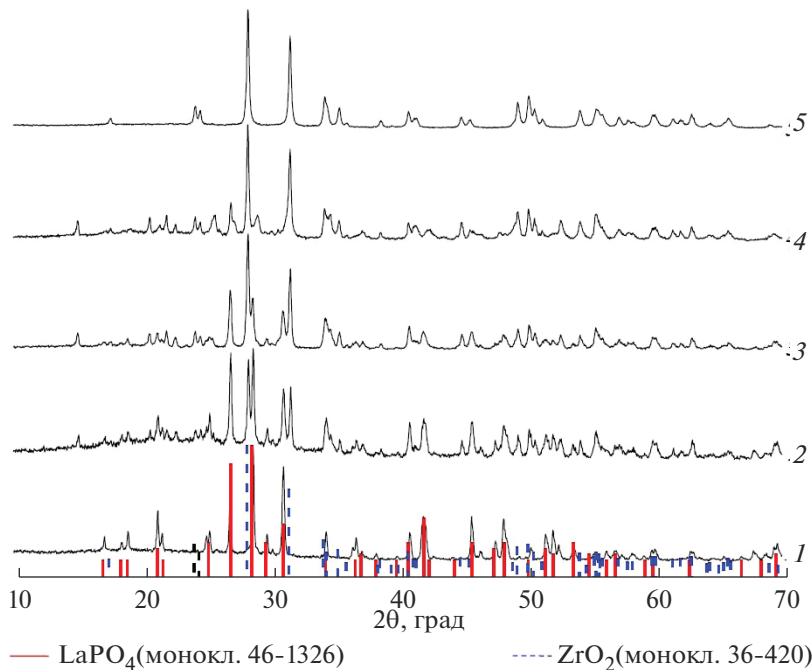


Рис. 1. Рентгеновские дифрактограммы образцов $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$, спеченных при 1600°C , 1 ч, где $x = 0.0$ (1), 0.5 (2), 0.7 (3), 0.8 (4), 1.0 (5); и штрих-диаграммы моноклинных LaPO_4 и ZrO_2 из базы данных ICDD-PDF.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Метод РФА показал, что ступенчатое спекание образцов $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ приводит к образованию моноклинных LaPO_4 и ZrO_2 , которые даже при 1600°C не взаимодействуют друг с другом (рис. 1).

При этом добавка оксида циркония оказывает заметное влияние на поверхность разрушения керамических композитов, как это можно видеть из рис. 2. Здесь наблюдается подавление интенсивного анизотропного роста моноклинных зерен LaPO_4 и уменьшение открытой пористости образцов до 1–2% по сравнению с LaPO_4 , у которого эта величина составила около 3%. Эти результаты сходны с СЭМ-изображением поверхности разрушения керамического образца ZrO_2 –30 об. % LaPO_4 , показывающим, кроме того, в основном межзеренный разрыв вследствие слабых связей по границам зерен [21].

Скорость выщелачивания (R) в дистиллированной воде ионов La^{3+} из всех исследованных матриц, как правило, составляла 10^{-8} – 10^{-9} г/(см² сут). При выходе кривой зависимости скорости выщелачивания от времени в область примерно постоянных (стационарных) значений, наблюдались величины $\approx 1.3 \times 10^{-9}$ г/(см² сут), вне зависимости от содержания LaPO_4 в композициях матриц (рис. 3). Скорость выщелачивания ионов Zr^{4+} была еще ниже (10^{-8} – 10^{-10} г/(см² сут) при стационарных значениях в интервале $(1-8) \times 10^{-10}$ г/(см² сут).

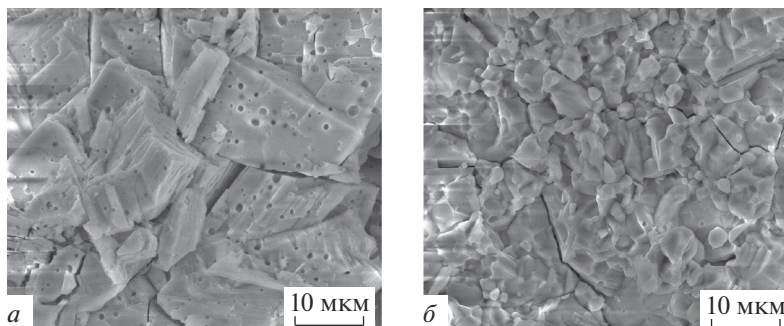


Рис. 2. СЭМ изображения поверхности излома керамических образцов, спеченных при 1600°C, 1 ч: LaPO_4 (а); $0.8\text{LaPO}_4-0.2\text{ZrO}_2$ (до выщелачивания) (б).

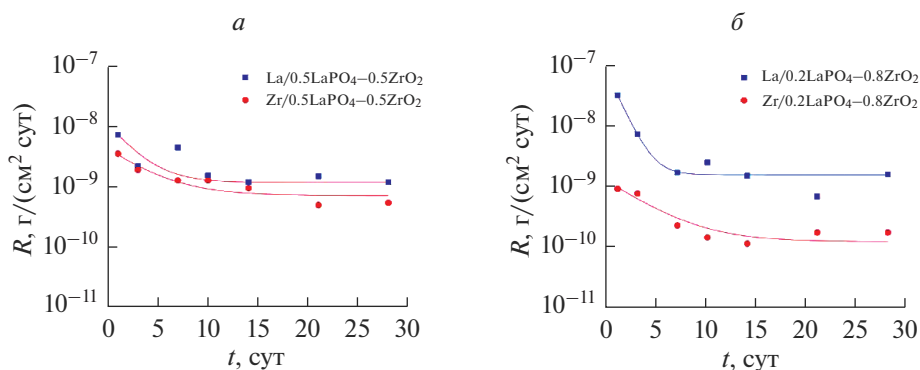


Рис. 3. Зависимости скорости выщелачивания (R) ионов La^{3+} и Zr^{4+} из керамических композитов: $0.5\text{LaPO}_4-0.5\text{ZrO}_2$ (а) и $0.2\text{LaPO}_4-0.8\text{ZrO}_2$ (б) от продолжительности процесса (t) в дистиллированной воде.

Кроме того, зависимость стационарных значений скорости выщелачивания циркония (R_{Zr}) от его массовой доли в матрице (w_{Zr}), построенная по данным для трех исследованных матриц ($0.8\text{LaPO}_4-0.2\text{ZrO}_2$, $0.5\text{LaPO}_4-0.5\text{ZrO}_2$ и $0.2\text{LaPO}_4-0.8\text{ZrO}_2$), представляет собой нисходящую прямую вида $R_{\text{Zr}} = 1.3 \times 10^{-9} - 2.2 \times 10^{-9} \cdot w_{\text{Zr}}$ с высоким коэффициентом детерминации (0.9991) (рис. 4). Следует также отметить, что при $w_{\text{Zr}} = 0$ это уравнение дает значение R_{Zr} , равное стационарному значению скорости выщелачивания La^{3+} . Таким образом, при низком содержании ZrO_2 в керамической матрице скорость выщелачивания Zr^{4+} приближается к скорости выщелачивания La^{3+} , т.е. выход обоих компонентов в воду наблюдается почти с одинаковой скоростью, но по мере увеличения доли ZrO_2 в матрице сопротивление этой фазы выщелачиванию водой увеличивается по сравнению с LaPO_4 , поэтому выщелачивание протекает неравномерно.

Эти результаты могут быть сопоставлены с нашими предыдущими результатами, полученными для скоростей выщелачивания ионов La^{3+} и Zr^{4+} в насыщенных водных растворах NaCl и Na_2SO_4 из керамической композитной матрицы $0.8\text{LaPO}_4-0.2\text{ZrO}_2$

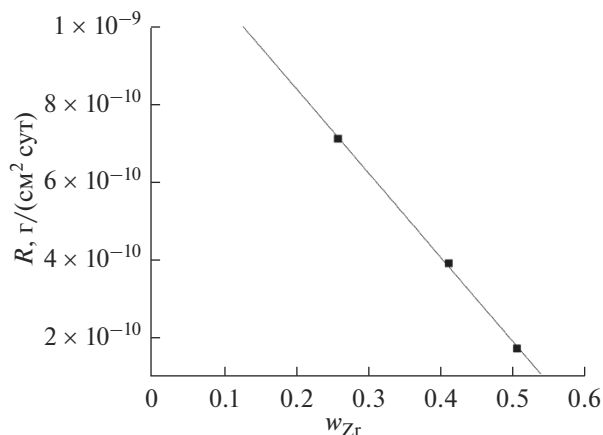


Рис. 4. Зависимость скорости выщелачивания ионов Zr^{4+} (R_{Zr}) от массовой доли циркония (w_{Zr}) в керамических композитах.

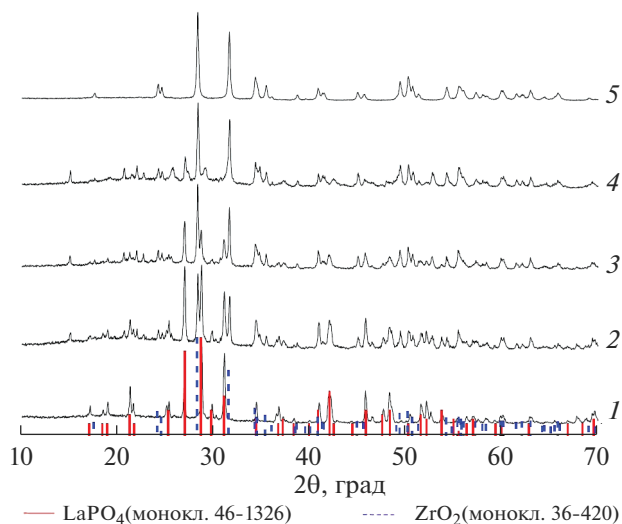


Рис. 5. Рентгеновские дифрактограммы керамических матриц $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$, где $x = 0.0$ (1), 0.5 (2), 0.7 (3), 0.8 (4), 1.0 (5), после выщелачивания и штрих-диаграммы моноклинных LaPO_4 и ZrO_2 из базы данных ICDD-PDF.

(10^{-10} – 10^{-11} г/(см² сут)) (см. публикацию Мезенцевой Л.П. и др. в журнале “Физика и химия стекла” за 2019 г.). В свою очередь, в [22] скорости выщелачивания Pr и Се керамики $\text{Ce}_{0.5}\text{Pr}_{0.5}\text{PO}_4$ при pH = 7 (дистиллированная вода) определены как $\sim 10^{-7}$ г м⁻² сут⁻¹) (10^{-11} г/(см² сут)).

Результаты РФА и электронной микроскопии керамических матриц после выщелачивания представлены на рис. 5 и 6.

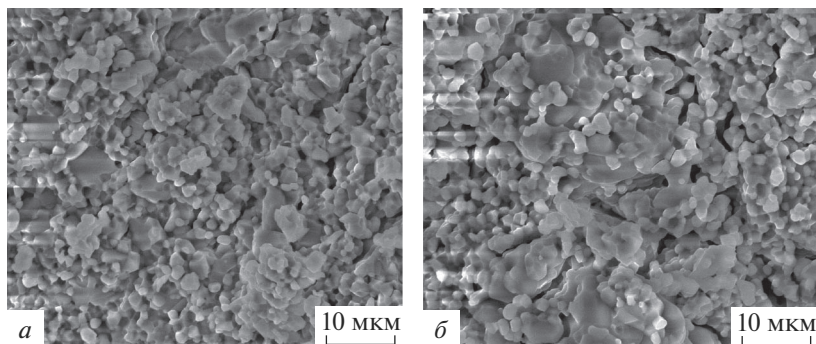


Рис. 6. СЭМ изображения поверхности излома керамических матриц после выщелачивания: $0.5\text{LaPO}_4-0.5\text{ZrO}_2$ (а), $0.2\text{LaPO}_4-0.8\text{ZrO}_2$ (б).

Из этих рисунков видно, что рентгеновские дифрактограммы показывают наличие моноклинных LaPO_4 и ZrO_2 , а микрофотографии поверхности излома не демонстрируют каких-либо заметных изменений по сравнению с исходными керамическими материалами (рис. 2).

Следовательно, керамические композитные матрицы на основе LaPO_4 с добавками ZrO_2 являются перспективными материалами для дальнейшего захоронения радиоактивных отходов некоторых изотопов актинид-редкоземельной фракции, поскольку матрицы обладают высокой химической стойкостью, изоморфной емкостью LaPO_4 и термостойкостью по крайней мере до 1600°C .

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В соответствии с уникальным подходом к золь-гель методике были синтезированы наноразмерные порошки-прекурсоры $(1-x)\text{LaPO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}-x\text{ZrO}(\text{OH})_2$ для дальнейшего получения керамических композитных матриц $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ ($x = 0.0, 0.2, 0.3, 0.5, 0.7, 0.8$ и 1.0). Порошки $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ были получены путем предварительной термической обработки некомпактированных порошков-прекурсоров при температуре 850°C при сохранении их высокой степени дисперсности, обеспечивающей их хорошее спекание от 1000 до 1600°C . Спеченные керамические композитные матрицы представляли собой моноклинные LaPO_4 и ZrO_2 , которые не взаимодействовали друг с другом даже при высоких температурах.

Установлено, что скорость выщелачивания ионов La^{3+} и Zr^{4+} из керамических матриц в дистиллированной воде была низкой, а поверхность разрушения композитов не имела заметных изменений.

Поэтому мы считаем, что керамические матрицы $(1-x)\text{LaPO}_4-x\text{ZrO}_2$ могут быть перспективными материалами для отверждения и утилизации актинид-редкоземельной фракции высокоактивных отходов (ВАО).

Работа выполнена по бюджетной программе Института химии силикатов РАН при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации (проект № АААА-А19-119022290092-5).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Neumeier S., Arinicheva Y., Ji Y., Heuser J.M., Kowalski P.M., Kegler P., Schlenz H., Bosbach D., Deissmann G. New insights into phosphate based materials for the immobilisation of actinides // *Radiochim. Acta*. 2017. V. 105. № 11. P. 961–984.
2. Ji Y., Kowalski P.M., Neumeiera S., Deissmann G., Kulriyac P.K., Gale J.D. Atomistic modeling and experimental studies of radiation damage in monazite-type LaPO_4 ceramics // *Nucl. Instrum. Meth. B*. 2017. V. 393. P. 54–58.
3. Rayat M.S., Tech S.S.G.M., Singh R., Sharma L. Fabrication and machining of ceramic composites – A review on current scenario // *Mater. Manuf. Process*. 2017. V. 32. № 13. P. 1451–1474.
4. Rafiuddin M.R., Grosvenor A.P. An investigation of the chemical durability of hydrous and anhydrous rare-earth phosphates // *J. Nucl. Mater.* 2018. V. 509. P. 631–643.
5. Rafiuddin M.R., Grosvenor A.P. Probing the effect of radiation damage on the structure of rare-earth phosphates // *J. Alloys Compd.* 2015. V. 653. P. 279–289.
6. Teng Y., Wang X., Huang Y., [Wu L., Zeng P. Hot-pressure sintering, microstructure and chemical durability of $\text{Ce}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}\text{PO}_4$ monazite ceramics // *Ceram. Int.* 2015. V. 41. № 8. P. 10057–10062.
7. Teng Y., Zeng P., Huang Y., Wu L., Wang X. Hot-pressing of monazite $\text{Ce}_{0.5}\text{Pr}_{0.5}\text{PO}_4$ ceramic and its chemical durability // *J. Nucl. Mater.* 2015. V. 465. P. 482–487.
8. Dacheux N., Clavier N., Podor R. Versatile monazite: Resolving geological records and solving challenges in materials science. Monazite as a promising long-term radioactive waste matrix: Benefits of high-structural flexibility and chemical durability // *Am. Mineral.* 2013. V. 98. № 5–6. P. 833–847.
9. Clavier N., Podor R., Dacheux N. Crystal chemistry of the monazite structure // *J. Eur. Ceram. Soc.* 2011. V. 31. № 6. P. 941–976.
10. Meldrum A., Boatner L.A., Weber W.J., Ewing R.C. Radiation damage in zircon and monazite // *Geochim. Cosmochim. Acta*. 1998. V. 62. № 14. P. 2509–2520.
11. Montel J.-M. Minerals and design of new waste forms for conditioning nuclear waste // *C. R. Geosci.* 2011. V. 343. № 2–3. P. 230–236.
12. Neumeier S., Kegler P., Arinicheva Y., Shelyug A., Kowalski P.M., Schreinemachers C., Navrotsky A., Bosbach D. Thermochemistry of $\text{La}_{1-x}\text{Ln}_x\text{PO}_4$ -monazites ($\text{Ln} = \text{Gd}, \text{Eu}$) // *J. Chem. Thermodyn.* 2017. V. 105. P. 396–403.
13. Zhao X., Li Y., Teng Y., Wu L., Bi P., Yang X., Wan L. The effect of Ce content on structure and stability of $\text{Gd}_{1-x}\text{Ce}_x\text{PO}_4$: Theory and experiment // *J. Eur. Ceram. Soc.* 2019. V. 39. № 4. P. 1555–1563.
14. Caurant D., Loiseau P., Majerus O., Aubin-Chevaldonnet V., Bardez I., Quintas A. Glasses, glass-ceramics and ceramics for immobilization of highly radioactive nuclear wastes // In: *Glasses, Glass-Ceramics and Ceramics*. D. Caurant Ed., 2009. Nova Science Publishers, Inc., P. 1–445.
15. Fox K., Hoffman E., Manjooran N., Pickrell G. *Advances in Materials Science for Environmental and Nuclear Technology* // Published by John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, New Jersey. Book Series: *Ceramic Transactions*. 2010. V. 222. 312 p.
16. Lu X., Deng L., Kerisit S., Du J. Structural role of ZrO_2 and its impact on properties of borosilicate nuclear waste glasses // *Materials Degradation*. 2018. V. 2. Article N 19. (10 p.).
17. Wang L., Liang T. Ceramics for high level radioactive waste solidification // *J. Adv. Ceramics*. 2012. V. 1. № 3. P. 194–203.
18. Zubekhina B., Burakov B. Leaching of plutonium from “old” samples of single phase ceramics based on $\text{Zr}_{0.79}\text{Gd}_{0.14}\text{Pu}_{0.04}\text{O}_{1.93}$ and $\text{La}_{0.9}\text{Pu}_{0.1}\text{PO}_4$ doped with ^{238}Pu // *MRS Advances*. 2017. V. 1. P. 4249–4253.
19. Зубехина Б.Ю. Влияние радиационных эффектов на гидрохимическую устойчивость матриц, содержащих актиниды. Автореф. дисс. ... к. х. н. МГУ им. М.В. Ломоносова, 2020. 23 с.
20. Mezentsева L., Osipov A., Ugolkov V., Kruchinina I., Maslennikova T., Koptelova L. Sol-gel synthesis of precursors and preparation of ceramic composites based on LaPO_4 with Y_2O_3 and ZrO_2 additions // *J. Sol-Gel Sci. Technol.* 2019. V. 92. № 2. P. 427–441.
21. Li Z., Liu J., Li S., Du H. Microstructure, mechanical properties and thermal shock resistance of ZrO_2 - LaPO_4 composites // *J. Alloy. Compd.* 2009. V. 480. № 2. P. 863–866.
22. Ma J., Teng Y., Huang Y., Wu L., Zhang K., Zhao X. Effects of sintering process, pH and temperature on chemical durability of $\text{Ce}_{0.5}\text{Pr}_{0.5}\text{PO}_4$ ceramics // *J. Nucl. Mater.* 2015. V. 465. P. 550–555.