

УДК 546.06,620.193

## ИЗУЧЕНИЕ ХИМИЧЕСКОЙ УСТОЙЧИВОСТИ КЕРАМИКИ НА ОСНОВЕ ОКСИДА $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$ СО СТРУКТУРОЙ ГРАНАТА В РАЗЛИЧНЫХ СРЕДАХ

© 2023 г. Л. С. Алексеева<sup>1</sup>, \*, А. В. Нохрин<sup>1</sup>, А. И. Орлова<sup>1</sup>, М. С. Болдин<sup>1</sup>,  
А. В. Воронин<sup>1</sup>, А. А. Мурашов<sup>1</sup>, В. Н. Чувильдеев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Нижегородский государственный университет им. Н.И. Лобачевского,  
пр. Гагарина, 23, Нижний Новгород, 603022 Россия

\*e-mail: golovkina\_lyudmila@mail.ru

Поступила в редакцию 15.03.2023 г.

После доработки 08.07.2023 г.

Принята к публикации 15.08.2023 г.

Оксид  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  со структурой минерала граната получен методом соосаждения после отжига при 1000°C. На его основе методом электроимпульсного плазменного спекания получена мелкозернистая керамика. Относительная плотность керамики составила 99.1%. Изучена химическая устойчивость полученных керамических образцов в статическом режиме при 90°C в дистиллированной и минеральной воде, а также в слабокислой и слабощелочной средах. Достиженные минимальные скорости выщелачивания Y и Nd составили  $\sim 10^{-6}$ – $10^{-10}$  г/(см<sup>2</sup> сут). Изучено влияние контактной среды на скорость и механизм выщелачивания неодима и иттрия из керамики  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  в течение 42 сут.

**Ключевые слова:** минералоподобные матрицы, гранат, керамика, гидролитические испытания, механизм выщелачивания

DOI: 10.31857/S0002337X23080018, EDN: XNKEQQ

### ВВЕДЕНИЕ

Иммобилизация актиноидной и редкоземельной фракций высокоактивных компонентов радиоактивных отходов (РАО) является одной из важных задач современной радиохимии. В настоящее время основной концепцией обращения с РАО является их остекловывание. Однако содержание редкоземельных элементов (РЗЭ) в стекле (в пересчете на оксиды) может достигать всего ~10 мас. % [1], а дальнейшее увеличение концентрации приводит к выделению кристаллических фаз, способствуя девитрификации [2, 3].

Альтернативным подходом обращения с актиноидной и редкоземельной фракциями РАО является их иммобилизация в неорганические соединения со структурами природных минералов, характеризующиеся высокой термической, термомеханической, радиационной и химической устойчивостью. Для решения этой задачи активно исследуются полифазный композит Синрок [4–6], однофазные соединения со структурами граната [7–18], цирконолита [5, 19–21], муратаита [22–24], пирохлора [7, 25–27], коснарита [28–31], монацита [8, 29, 32, 33] и др. Выбор керамической матрицы основан на структурных свойствах и принципах

изоморфного включения элементов, различных по заряду, размеру, химической природе.

Структура граната является одной из перспективных матриц для иммобилизации актиноидной и редкоземельной фракций РАО. Гранаты представляют собой группу минералов с общей формулой  $B_3^{2+}R_2^{3+}(XO_4)_3$ . Структура граната устойчива в широком диапазоне катионных замещений во всех кристаллографических позициях. Позиция катиона  $B^{2+}$  может быть занята катионами Mg, Fe, Mn, Ca, актиноидов (в т.ч. Pu(IV)), 4–16 мас. % [10, 11]) и РЗЭ; позиция катиона  $R^{3+}$  – катионами Al, Fe, Cr, Ga; позиция катиона X – катионами Al, Fe, Ga, Si [8, 11]. Таким образом, структура граната может служить матрицей для иммобилизации актиноидной и редкоземельной фракций РАО сложного состава, включая катионы актиноидов и лантаноидов различного радиуса и степени окисления. Кроме того, соединения со структурой граната имеют высокую гидролитическую и радиационную стабильность [8, 9, 12–15, 18].

В работе [9] изучена гидролитическая устойчивость соединения  $Y_{2.8853}Sm_{0.1024}Pu_{0.0092}Al_5O_{12}$  в би-дистиллированной воде при 90°C в течение 14 сут

непосредственно после синтеза и после аморфизации. Скорости выщелачивания Y и  $^{244}\text{Cm}$  увеличивались на порядок после аморфизации и составляли  $10^{-5}$ – $10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup> сут). В работе [15] исследована гидролитическая устойчивость соединения  $\text{Y}_{2.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  в гидротермальных условиях (при 100, 200, 300°C) в дистиллированной воде. Скорости выщелачивания Y и Nd составили  $10^{-7}$ – $10^{-8}$  г/(см<sup>2</sup> сут). При повышении температуры эксперимента скорости выщелачивания катионов растут примерно на 2–2.5 порядка при 100°C и еще на 1 порядок при 200 и 300°C. В работе [18] изучалась химическая устойчивость соединений  $(\text{Ca}_{2.5}\text{Ce}_{0.5})\text{Zr}_2\text{Fe}_3\text{O}_{12}$  и  $(\text{Ca}_{1.5}\text{GdTh}_{0.5})(\text{ZrFe})\text{Fe}_3\text{O}_{12}$  при 150°C в дистиллированной воде и 0.01 М HCl. Показано, что достигнутые на 30 сут скорости выщелачивания в 0.01 М HCl выше на 2–3 порядка для Gd и Th и на 5 порядков для Ce, чем в дистиллированной воде.

Целью работы являлось исследование химической устойчивости в различных средах керамики на основе оксида  $\text{Y}_{2.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  (YAG:Nd) со структурой граната – потенциальной керамической матрицы для иммобилизации РЗЭ и минор-актиноидов (Am, Cm), в частности. Неодим использовался в качестве химического и структурного аналога трехвалентных актиноидов (Am, Cm) и лантаноидов цериевой группы.

Для получения соединения  $\text{Y}_{2.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  использовали метод соосаждения, а для получения керамики – метод электроимпульсного плазменного спекания (ЭИПС), представляющего собой новый способ высокоскоростного горячего прессования [29]. Технология ЭИПС позволяет достигать высокой относительной плотности керамики за существенно меньшие времена процессов и при более низких температурах по сравнению с традиционными методами горячего прессования или свободного спекания [29]. Это обеспечивает условия для повышения технологичности и эффективности работы с ядерными материалами, а также позволяет минимизировать процесс диссоциации опасных компонентов с поверхности керамических образцов.

### ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для получения порошка  $\text{Y}_{2.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  со структурой граната к смеси растворов нитратов иттрия ( $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , “х. ч.”), неодима ( $\text{Nd}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , “х. ч.”) и алюминия ( $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ , “ч.”), взятых в стехиометрических количествах, при постоянном интенсивном перемешивании постепенно прибавляли 5%-ный водный раствор аммиака до pH 8. По-

лученный гель выпаривали при 90°C, а сухой остаток последовательно отжигали при температурах 300, 500, 800 и 1000°C в течение 6 ч на каждой стадии.

Фазовый состав порошка и керамики определяли на рентгеновском дифрактометре Shimadzu LabX XRD-7000 (фильтрованное  $\text{CuK}_\alpha$ -излучение).

Для получения керамики использовали установку Dr. Sinter model SPS-625. Порошки помещали в графитовую пресс-форму с внутренним диаметром 12 мм и нагревали со скоростью  $v_n = 50^\circ\text{C}/\text{мин}$  за счет пропуска миллисекундных импульсов постоянного электрического тока большой мощности (до 3 кА) в условиях приложения одноосного давления. Температура спекания измерялась с помощью пирометра Chino IR-АН, сфокусированного на поверхности графитовой пресс-формы. Спекание осуществляли в вакууме (6 Па). Точность определения температуры составляла  $\pm 10^\circ\text{C}$ , точность поддержания давления – 1 МПа. Величина усадки ( $L$ ), соответствующей изменению высоты прессовки, и величина линейной скорости усадки порошков ( $S$ ) контролировали с помощью дилатометра Futaba Pulscale SMM151A, входящего в состав установки Dr. Sinter model SPS-625. Спекание керамики проводили при  $t = 1400^\circ\text{C}$  и  $p = 70$  МПа. Изотермическая выдержка при температуре спекания отсутствовала.

Плотность спеченных образцов измеряли методом гидростатического взвешивания в дистиллированной воде при помощи весов Sartorius CPA. Для оценки параметров микроструктуры образцов использовали растровый электронный микроскоп JEOL JSM-6490.

Химическую устойчивость керамики исследовали методом выщелачивания в статическом режиме в течение 42 сут. Испытания проводили при температуре 90°C в дистиллированной и минеральной (химический состав, мг/л:  $\text{SO}_4^{2-} < 25$ ,  $\text{HCO}_3^- < 300$ – $400$ ,  $\text{Cl}^- < 10$ ,  $\text{Na}^+ + \text{K}^+ < 100$ – $160$ ,  $\text{Ca}^{2+} < 25$ ,  $\text{Mg}^{2+} < 10$ ) воде, слабокислом (0.01 М HCl) и слабощелочном (0.01 М NaOH) растворах. Концентрацию Nd в пробах определяли с помощью масс-спектрометра (МС) высокого разрешения с индуктивно-связанной плазмой (ИСП) ELEMENT 2 по внешней градуировке. Градуировку проводили по растворам многоэлементного стандарта ICP-MS-68A-A High-Purity Standards и с помощью времяпролетного масс-спектрометра iDplus Performance.

В процессе эксперимента рассчитывали нормализованную потерю массы по формуле

$$NL_i = a_{ki}/(M_{0i}S), \quad (1)$$

где  $NL_i$  – нормализованная потеря массы элемента  $i$ , г/см<sup>2</sup>;  $a_{ki}$  – масса компонента  $i$ , перешедшего в раствор в процессе выщелачивания, г;  $M_{0i}$  – массовая концентрация элемента в образце в начале испытаний, г/г;  $S$  – площадь поверхности образца, см<sup>2</sup>.

Скорость выщелачивания  $R_i$  рассчитывали по формуле

$$R_i = NL_i / \tau_n, \quad (2)$$

где  $\tau_n$  – промежуток времени, сут.

Для определения механизма выщелачивания катионов из керамики использовали модель де Гроота-ван дер Слоота [34], которую можно представить в виде уравнения

$$\lg B_i = A \lg \tau + \text{const}, \quad (3)$$

где  $B_i$  – общий выход элемента (Nd, Y) из образца за время контакта с водой, мг/м<sup>2</sup>;  $\tau$  – время контакта, сут.

Величина  $B_i$  рассчитывалась по формуле

$$B_i = C_i(L/S) \sqrt{\tau_n} / (\sqrt{\tau_n} - \sqrt{\tau_{n-1}}), \quad (4)$$

где  $C_i$  – концентрация элемента в растворе к концу  $n$ -го периода, мг/л;  $L/S$  – отношение объема раствора к площади поверхности образца, л/м<sup>2</sup>;  $\tau_n$  – суммарное время контакта на период  $n$ , сут; и  $\tau_{n-1}$  – время контакта до начала периода  $n$ , сут.

Значениям коэффициента  $A$  в уравнении (3) соответствуют следующие механизмы выщелачивания элементов:  $<0.35$  – вымывание с поверхности компаунда;  $0.35-0.65$  – диффузия из внутрен-

них слоев;  $>0.65$  – растворение поверхностного слоя компаунда [35, 36].

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

По данным РФА (рис. 1), после отжига при 1000°C полученное соединение кристаллизовалось в ожидаемой структуре граната и относилось к пр. гр.  $Ia\bar{3}d$  (PDF 00-0033-0040). Примесные фазы в синтезированных порошках не выявлены. Теоретическая рентгенографическая плотность соединения составляет  $\rho_{th} = 4.76$  г/см<sup>3</sup>.

Температурные зависимости усадки и скорости усадки порошков  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  представлены на рис. 2. Температурные зависимости  $L(t)$  имеют обычный трехстадийный характер. Как видно из рис. 2, стадия интенсивной усадки порошков лежит в интервале температур от 1020 до 1360°C. Максимальная линейная скорость усадки наблюдается при  $t = 1270-1310^\circ\text{C}$  и составляет  $S_{max} = 0.009$  мм/с.

После спекания в составе керамических образцов наблюдали появление примесной фазы (не более 3 об. %), изоструктурной фазы перовскита  $YAlO_3$  (PDF 00-0033-0041) (рис. 1). Спеченные образцы имели мелкозернистую микроструктуру (рис. 3) со средним размером зерна граната (темно-серые области)  $\sim 1-10$  мкм, размер частиц примесной фазы перовскита (светло-серые частицы) составлял  $\sim 1-2$  мкм. Также в структуре наблюдается остаточная пористость – черные области разме-

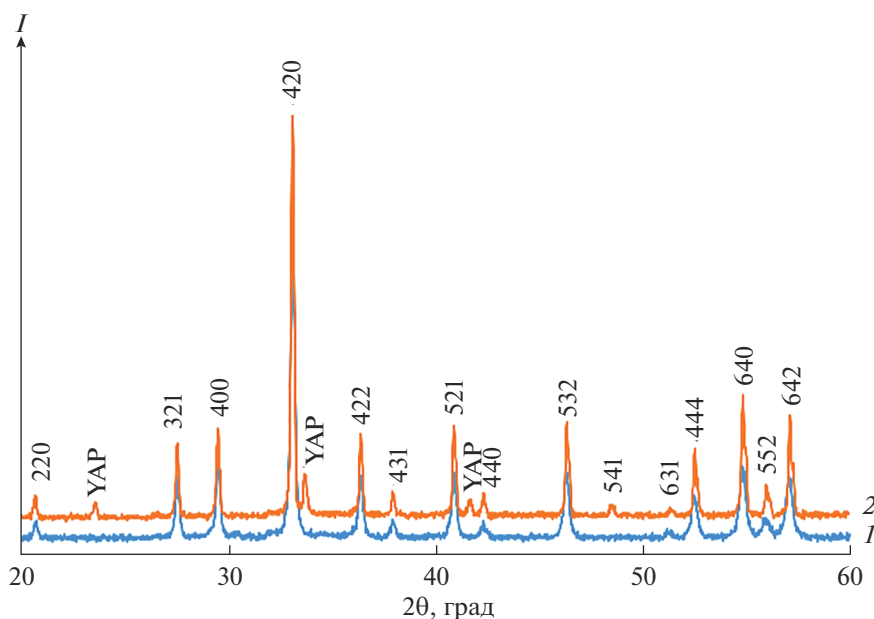


Рис. 1. Дифрактограммы порошка (1) и керамики (2)  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$ .

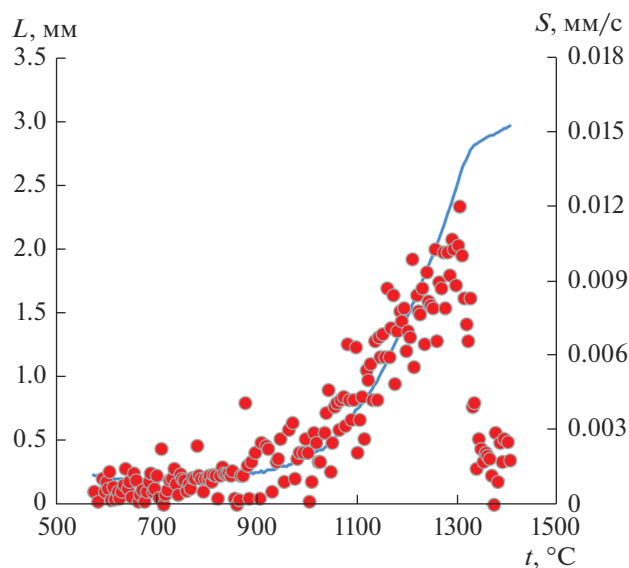


Рис. 2. Зависимости усадки и скорости усадки порошков  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  от температуры нагрева.

ром  $\sim 0.5\text{--}1$  мкм. Относительная плотность спеченных образцов составляет  $\sim 99.1\%$ .

Керамические образцы  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  исследовали на химическую устойчивость в дистиллированной и минеральной воде, слабокислом (0.01 М HCl) и слабощелочном (0.01 М NaOH) растворах. Минимальные достигнутые на 42 сут скорости выщелачивания неодима и иттрия из образцов  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  представлены в табл. 1. Зависимости нормализованной потери массы  $NL_i$  и скорости выщелачивания  $R_i$  от времени испытания  $\tau$  приведены на рис. 4. Проведенные исследования показывают, что содержание иттрия и неодима в водных пробах после выщелачивания в слабощелочной среде было ниже предела обнаружения методом ИСП-МС. Важно также подчеркнуть, что достигнутые скорости выщелачивания характеризуют исследуемые керамические образцы как обладающие высокой гидролитической устой-

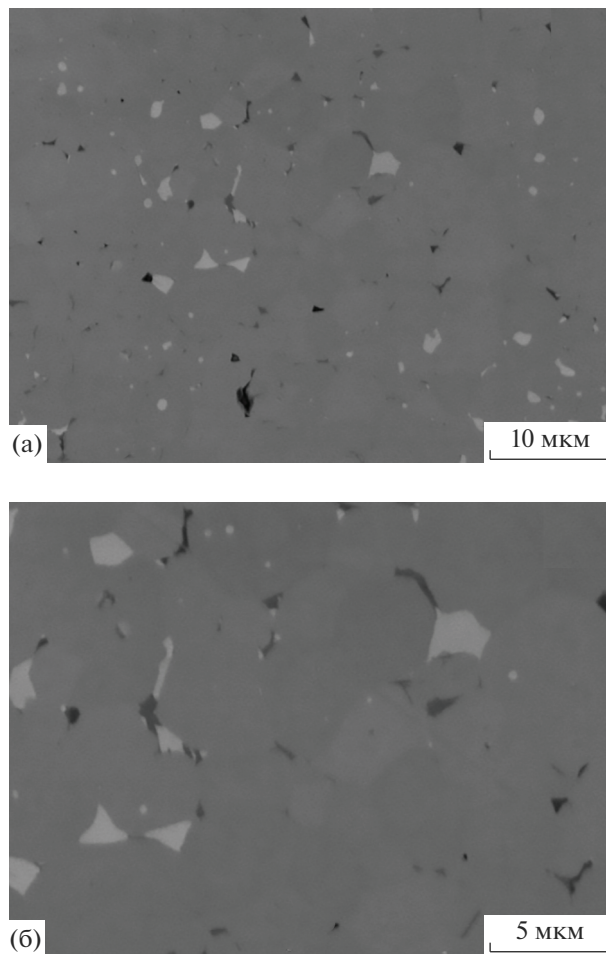


Рис. 3. Микроструктура керамики YAG:Nd при различных увеличениях.

чивостью. Наименьшая скорость выщелачивания достигается при испытаниях в слабощелочной среде и минеральной воде (табл. 1), что косвенно может свидетельствовать о высокой устойчивости исследуемых соединений в условиях реального захоронения. Сравнение полученных значений  $R$  с известными данными [18, 26, 37, 38] позволяет ха-

Таблица 1. Нормализованные потери массы NL и скорости выщелачивания  $R$  иттрия и неодима из керамики  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$ , достигнутые на 42 сут

Контактная среда	NL, г/см <sup>2</sup>		$R$ , г/(см <sup>2</sup> сут)	
	Y	Nd	Y	Nd
Дистиллированная вода	$4.23 \times 10^{-7}$	$2.04 \times 10^{-7}$	$1.01 \times 10^{-8}$	$6.48 \times 10^{-9}$
Минеральная вода	$3.37 \times 10^{-8}$	$1.19 \times 10^{-8}$	$7.36 \times 10^{-10}$	$2.67 \times 10^{-10}$
0.01 М HCl	$2.88 \times 10^{-4}$	$3.43 \times 10^{-4}$	$8.33 \times 10^{-6}$	$6.2 \times 10^{-6}$
0.01 М NaOH	$<8.95 \times 10^{-9}$	$<8.84 \times 10^{-9}$	$<2.13 \times 10^{-10}$	$<2.1 \times 10^{-10}$

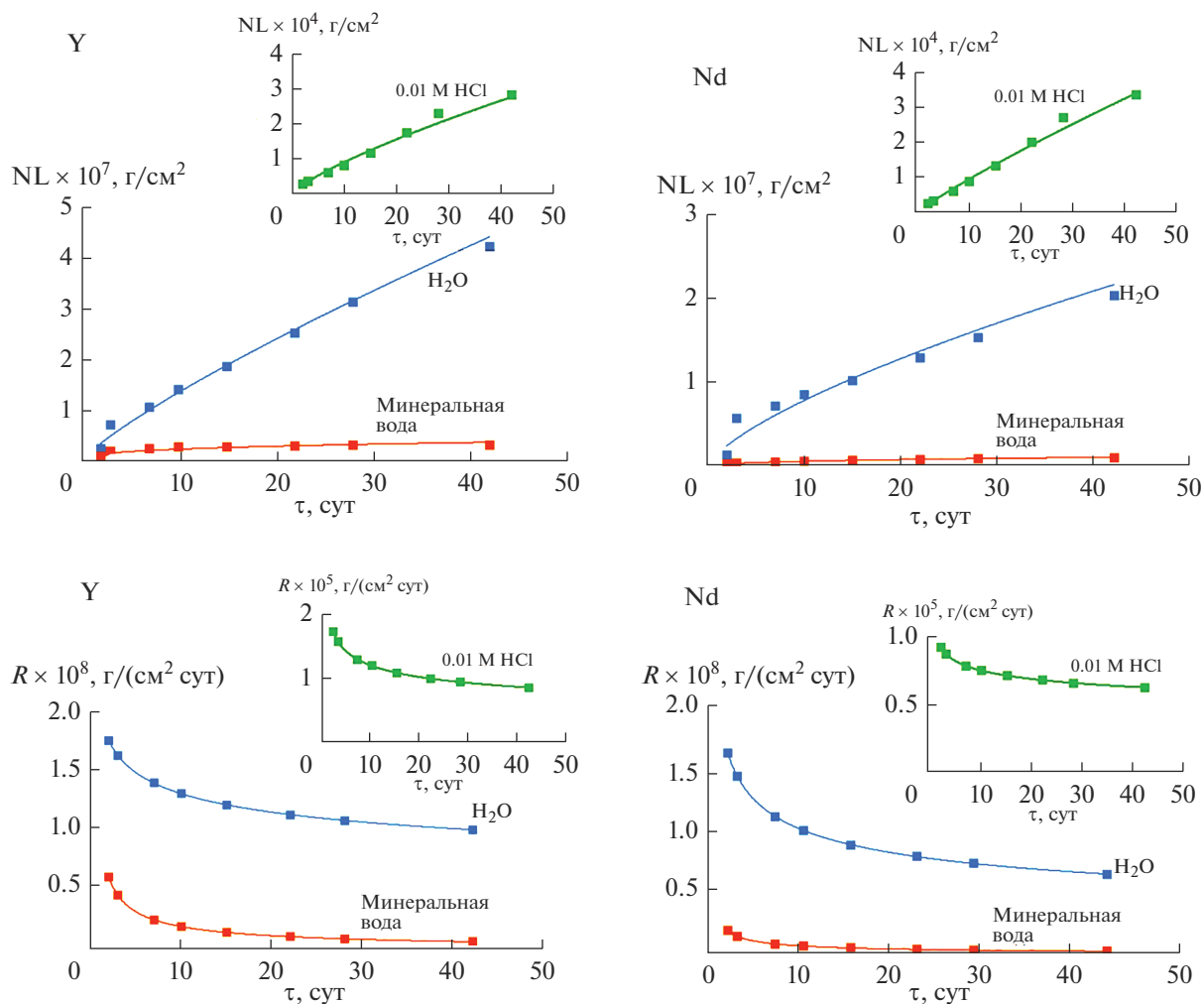


Рис. 4. Зависимости нормализованной потери массы  $NL_i$  и скорости выщелачивания  $R_i$  иттрия и неодима от времени  $\tau$  после выдержки в дистиллированной воде, минеральной воде, слабокислой среде.

рактизовать исследуемые образцы как обладающие высокой гидролитической устойчивостью.

Следует отметить, что из-за наличия пор реальная площадь поверхности  $S$  исследуемых керамических образцов больше, чем теоретическая величина, которая рассчитана исходя из данных о геометрических размерах образцов (рис. 3). Поэтому, по нашему мнению, представленные на рис. 4 и в табл. 1 результаты испытаний на выщелачивание характеризуют предельную величину  $R$  для данного соединения. Фазовый состав после испытаний не изменился (рис. 5), однако наблюдалось незначительное снижение содержания примесной фазы  $YAlO_3$  (до 2 об. %).

Представленные на рис. 6 микрофотографии свидетельствуют об отсутствии изменений микроструктуры поверхности керамики после испытаний в дистиллированной и минеральной воде, а

также в слабощелочной среде. После испытаний в 0.01 M HCl наблюдалось практически полное исчезновение частиц примесной фазы  $YAlO_3$  (светло-серые зерна), а также образование микропор преимущественно по границам зерен.

Исходя из данных РФА и РЭМ одной из причин резкого увеличения скорости выщелачивания в кислой среде является растворение фазы перовскита в поверхностном слое керамики. Тем не менее, наличие бентонитового буфера в хранилище, дающего щелочную реакцию, обеспечит наибольшую устойчивость исследуемых матриц к выщелачиванию.

В соответствии с формулой (3), для определения механизма выщелачивания неодима из керамики  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  построили зависимость коэффициента  $B$  от времени эксперимента  $\tau$  в логарифмических координатах (рис. 7). По углу наклона

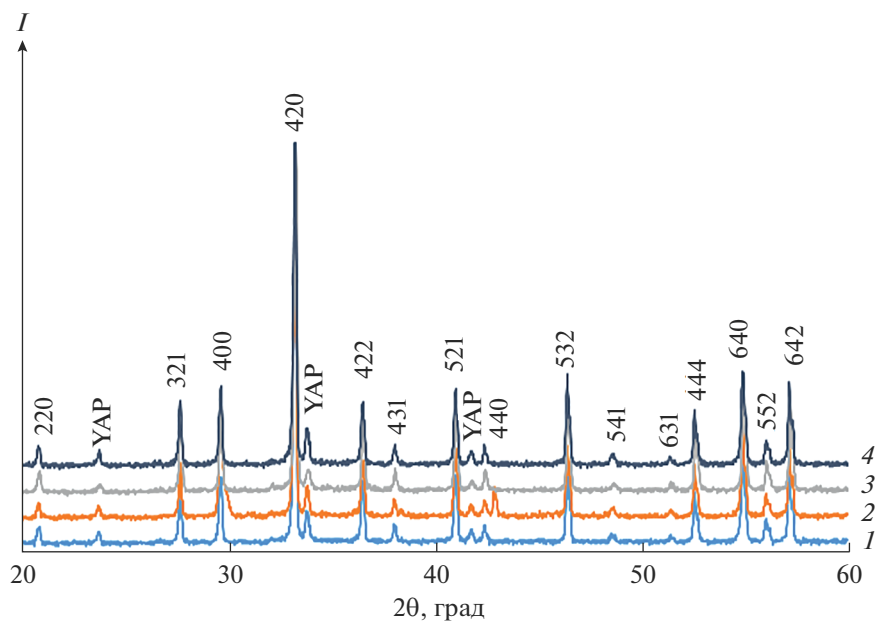


Рис. 5. Дифрактограммы керамики YAG:Nd после испытаний в дистиллированной воде (1), минеральной воде (2), слабокислом (3) и слабощелочном (4) растворах.

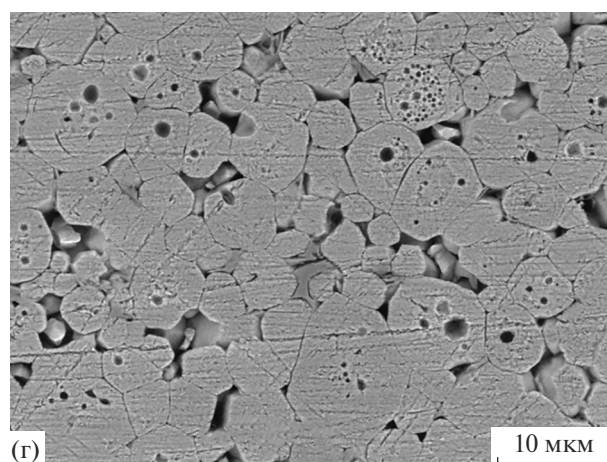
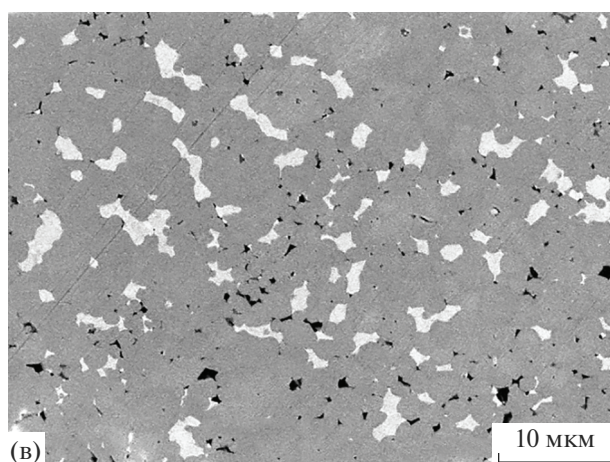
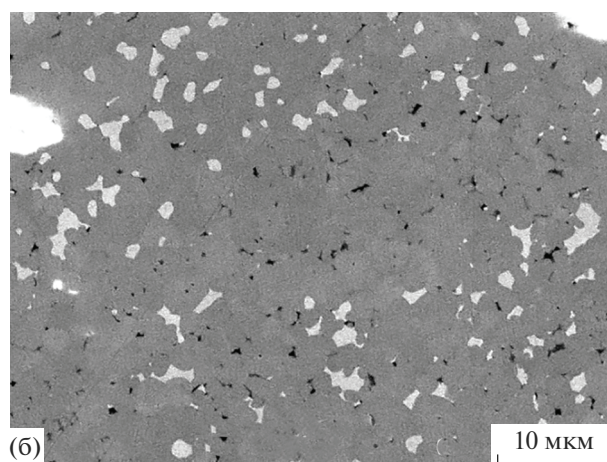
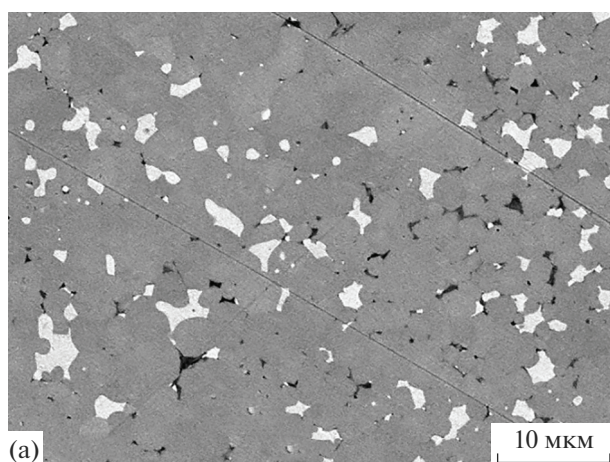


Рис. 6. Микроструктура керамики YAG:Nd после испытаний в дистиллированной (а) и минеральной (б) воде, слабокислой (в) и слабощелочной (г) средах.

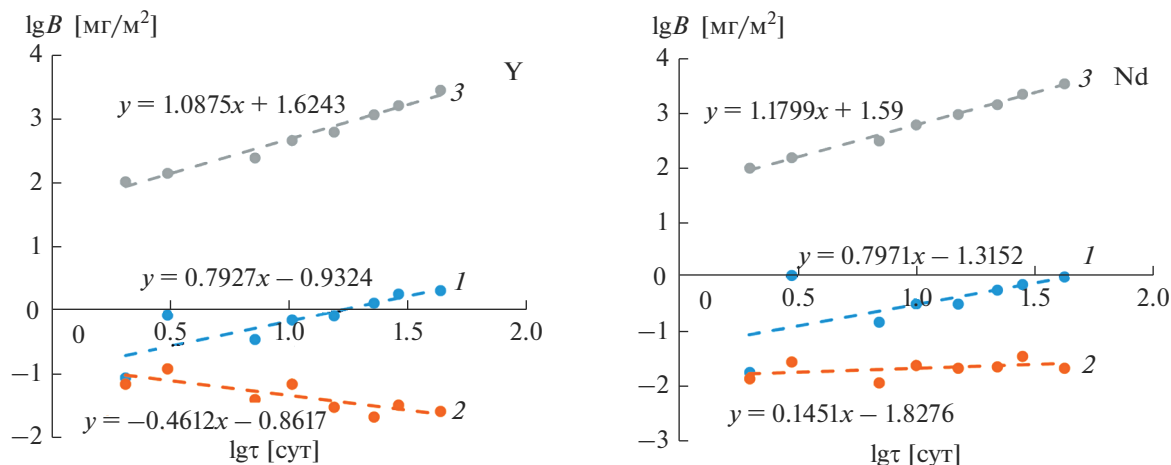


Рис. 7. Логарифмические зависимости выхода Y и Nd от времени контакта с дистиллированной (1), минеральной (2) водой и слабокислой средой (3).

зависимости  $\ln B - \ln \tau$  были определены значения коэффициента  $A$ , зависящего от механизма выщелачивания. Из представленных на рис. 7 данных видно, что выщелачивание Y и Nd в слабокислой среде и дистиллированной воде происходит за счет растворения поверхностного слоя керамики, т.к. коэффициент  $A$  составляет  $\sim 0.8$  (для дистиллированной воды) и  $\sim 1.1 - 1.2$  (для слабокислой среды). Выщелачивание Y и Nd из мелкозернистой керамики YAG:Nd в минеральной воде происходит за счет вымывания с поверхности керамики (коэффициент  $A$  составляет  $-0.46$  и  $\sim 0.15$  соответственно).

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предельная скорость выщелачивания иттрия и неодима из мелкозернистой керамики  $Y_{2.5}Nd_{0.5}Al_5O_{12}$  на 42 сутки в минеральной воде и слабощелочной среде не превышала  $\sim 7.4 \times 10^{-10}$  г/(см<sup>2</sup> сут). В слабокислой среде скорость выщелачивания Y и Nd составляет  $8.33 \times 10^{-6}$  и  $6.2 \times 10^{-6}$  г/(см<sup>2</sup> сут) соответственно. Увеличение скорости выщелачивания катионов в слабокислой среде, по-видимому, связано с растворением в поверхностном слое примесной фазы перовскита, которая образуется при спекании керамики.

Установлено, что выщелачивание Y и Nd в слабокислой среде и дистиллированной воде происходит за счет растворения поверхностного слоя керамики, а в минеральной воде — за счет вымывания элементов с поверхности керамики.

### ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Работа выполнена при поддержке гранта РФФИ № 20-21-00145 Росатом.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Crum J.V., Vienna J.D. Environmental Issues and Waste Management Technologies in the Materials and Nuclear Industries XII // Ceram. Trans. 2008. V. 207. P. 3–8. <https://doi.org/10.1002/9780470538371.ch4>
2. Фосфатные стекла с радиоактивными отходами / Под ред. Вашмана А.А., Полякова А.С. М.: ЦНИИАтоминформ, 1997. 172 с.
3. Стефановский С.В., Стефановская О.И., Семенова Д.В. Фазовый состав и структура стекломатериалов на натрий-алюмофосфатной основе, содержащих оксиды редкоземельных элементов // Радиоактивные отходы. 2018. № 1(2). С. 97–101.
4. Hsieh Y.-H., Humphry-Baker S.A., Horlait D., Gregg D.J., Vance E.R., Lee W.E. Durability of Hot Uniaxially Pressed Synroc Derivative Wasteform for EURO-GANEX Wastes // J. Nucl. Mater. 2018. V. 509. P. 43–53. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.06.006>
5. Vance E.R., Jostsons A., Day R.A. Excess Pu Disposition in Zirconolite-Rich Synroc // MRS Symp. Proc. Pittsburgh: MRS, 1996. V. 412. P. 41–47. <https://doi.org/10.1557/PROC-412-41>
6. Solomah A.G., Sridhar T.S., Jones S.C. Immobilization of Uranium-Rich High-Level Radioactive Waste in Synroc-FA // Adv. Ceram. 1986. V. 20. P. 259–265.
7. Лаверов Н.П., Юдинцев С.В., Лившиц Т.С., Стефановский С.В., Лукиных А.Н., Юнг Р.Ч. Искусственные минералы со структурой пироклора и граната: матрицы для иммобилизации актинидсодержащих отходов // Геохимия. 2010. № 1. С. 3–16.
8. Potanina E., Golovkina L., Orlova A., Nokhrin A., Boldin M., Sakharov N. Lanthanide (Nd, Gd) Compounds with Garnet and Monazite Structures. Powders Synthesis by “Wet” Chemistry to Sintering Ceramics by Spark Plasma Sintering // J. Nucl. Mater. 2016. V. 473. P. 93–98. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.02.014>
9. Томилин С.В., Лизин А.А., Лукиных А.Н., Лившиц Т.С. Радиационная и химическая устойчивость алюмоиттриевого граната // Радиохимия. 2011. Т. 53. № 2. С. 162–165.

10. *Burakov B.E., Anderson E.B.* Plutonium Future – The Science // AIP Conf. Proc. Melville, NY. 2000. P. 159–160.  
<https://doi.org/10.1063/1.1292241>
11. *Лаверов Н.П., Величкин В.И., Омеляненко Б.И., Юдинцев С.В., Петров В.А., Бычков А.В.* Изменение окружающей среды и климата: природные и связанные с ними техногенные катастрофы. Т. 5. Изоляция отработавших ядерных материалов: геолого-геохимические основы. М.: ИГЕМ РАН; ИФЗ РАН, 2008. 280 с.
12. *Лившиц Т.С., Лизин А.А., Джанг Дж., Юнг Р.Ч.* Аморфизация редкоземельных алюминатных гранатов при ионном облучении и распаде примеси  $^{244}\text{Cm}$  // Геология руд. месторождений. 2010. Т. 52. № 4. С. 297–309.
13. *Лившиц Т.С.* Устойчивость искусственных ферритных гранатов с актиноидами и лантаноидами в водных растворах // Геология руд. месторождений. 2008. Т. 50. № 6. С. 535–547.
14. *Лукиных А.Н., Томилин С.В., Лизин А.А., Лившиц Т.С.* Радиационная и химическая устойчивость синтетической керамики на основе ферритного граната // Радиохимия. 2008. Т. 50. № 4. С. 375–379.
15. *Алексеева Л.С., Нохрин А.В., Болдин М.С., Ланцев Е.А., Орлова А.И., Чувильдеев В.Н.* Гидролитическая устойчивость керамики на основе  $\text{Y}_{2.5}\text{Nd}_{0.5}\text{Al}_5\text{O}_{12}$  со структурой граната в гидротермальных условиях // Неорган. материалы. 2021. Т. 57. № 8. С. 918–922.  
<https://doi.org/10.31857/S0002337X21080170>
16. *Zhang S., Wang L., Xu B., Liu J., Luo S., Ji S., Ding Y., Zhang L., Ma J., Duan T.* Rapid Synthesis of Nd-Doped  $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$  Garnet Waste Forms by Microwave Sintering // Ceram. Int. 2021. V. 47. № 15. P. 21924–21933.  
<https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.04.210>
17. *Konovalov E.E., Lastov A.I., Nerozin N.A.* On Immobilization of High-Level Waste in an Y–Al Garnet-Based Cermet Matrix in SHS Conditions // Nucl. Eng. Technol. 2015. V. 1. № 2. P. 103–106.  
<https://doi.org/10.1016/j.nucet.2015.11.021>
18. *Yudintsev S.V., Osherova A.A., Dubinin A.V., Zotov A.V., Stefanosky S.V.* Corrosion Study of Actinide Waste Forms with Garnet-Type Structure // Proc. of Symp. “Sci. Basis for Nucl. Waste Management XXVIII”. Warrendale: MRS, 2004. V. 824. P. 287–292.
19. *Zhong M.-X., Walkley B., Bailey D.J. et al.* Synthesis of  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ce}_x\text{ZrTi}_{2-2x}\text{Al}_{2x}\text{O}_7$  Zirconolite Ceramics for Plutonium Disposition // J. Nucl. Mater. 2021. V. 556. P. 153198.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2021.153198>
20. *Blackburn L.R., Sun S.-K., Lawson S.M., Blackburn L.R., Ding H., Wang S.-Q., Bao W.-C., Gardner L.J., Sun S.-K., Stennett M.C., Corkhill C.L., Hyatt N.C.* Synthesis and Characterisation of  $\text{Ca}_{1-x}\text{Ce}_x\text{ZrTi}_{2-2x}\text{Cr}_{2x}\text{O}_7$ : Analogue Zirconolite Wasteform for the Immobilisation of Stockpiled UK Plutonium // J. Eur. Ceram. Soc. 2020. V. 40. P. 5909–5919.  
<https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2020.05.066>
21. *Strachan D.M., Scheele R.D., Buck E.C., Kozelisky A.E., Sell R.L., Elovich R.J., Buchmiller W.C.* Radiation Damage Effects in Candidate Titanates for Pu Disposition: Zirconolite // J. Nucl. Mater. 2008. V. 372. P. 16–31.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.01.278>
22. *Stefanovsky S.V., Yudintsev S.V., Nickolsky M.S., Stefanovsky O.I., Skvortsov M.V.* Characterization of Modified Murataite Based Ceramics as a Perspective Hosts for Actinides, Fission, and Corrosion Products of HLW // J. Nucl. Mater. 2020. V. 529. P. 151958.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2019.151958>
23. *Стефановский С.В., Пташкин А.Г., Князев О.А., Юдинцев С.В., Никонов Б.С., Лапина М.И.* Влияние условий синтеза на фазовый состав и строение торий-содержащей муратаитовой керамики // ФХОМ. 2007. № 4. С. 68–77.
24. *Маслаков К.И., Тетерин Ю.А., Стевановская О.И., Калмыков С.Н., Тетерин А.Ю., Иванов К.Е., Данилов С.С., Юдинцев С.В., Мясоедов Б.Ф.* Изучение методом РФЭС керамик на основе муратаита, содержащих лантаниды // Радиохимия. 2021. Т. 63. С. 572–581.  
<https://doi.org/10.31857/S0033831121060095>
25. *Wang Z., Zhu C., Wang H., Wang M., Liu C., Yang D., Li Y.* Preparation and Irradiation Stability of  $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$  Pyrochlore High-Entropy Ceramic for Immobilization of High-Level Nuclear Waste // J. Nucl. Mater. 2023. V. 574. P. 154212.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2022.154212>
26. *Vinokurov S.E., Kulyako Yu.M., Perevalov S.A., Myasoedov B.F.* Immobilization of Actinides in Pyrochlore-Type Matrices Produced by Self-Propagating High-Temperature Synthesis // Comp. Rend. Chim. 2007. V. 10. № 10–11. P. 1128–1130.  
<https://doi.org/10.1016/j.crci.2007.04.011>
27. *Лаверов Н.П., Юдинцев С.В., Величкин В.И., Лукиных А.Н., Томилин С.В., Лизин А.А., Стефановский С.В.* Влияние аморфизации на изоляционные свойства пироклоровой матрицы актинидов // Радиохимия. 2009. Т. 5. С. 462–468.
28. *Куражковская В.С., Орлова А.И., Быков Д.М.* Инфракрасная спектроскопия и строение тригональных ортофосфатов циркония с лантаноидами и актиноидами // Журн. структур. химии. 2004. Т. 45. № 6. С. 1013–1019.
29. *Orlova A.I.* Crystalline Phosphates for HLW Immobilization – Composition, Structure, Properties and Production of Ceramics. Spark Plasma Sintering as a Promising Sintering Technology // J. Nucl. Mater. 2022. V. 559. P. 153407.
30. *Bykov D.M., Konings R.J.M., Apostolidis C., Hen A., Colineau E., Wissb T., Raison P.* Synthesis and Investigation of Neptunium Zirconium Phosphate, a Member of the NZP Family: Crystal Structure, Thermal Behaviour and Mossbauer Spectroscopy Studies // Dalton Trans. 2017. V. 46. P. 11626–11635.  
<https://doi.org/10.1039/C7DT02110K>
31. *Быков Д.М., Орлова А.И., Томилин С.В., Лизин А.А., Лукиных А.Н.* Америций и плутоний в фосфатах тригонального строения (тип NZP)  $\text{Am}_{1/3}[\text{Zr}_2(\text{PO}_4)_3]$  и  $\text{Pu}_{1/4}[\text{Zr}_2(\text{PO}_4)_3]$  // Радиохимия. 2006. Т. 48. № 3. С. 211–216.
32. *Qin D., Shelyug A., Szenknect S., Mesbah A., Clavier N., Dacheux N., Navrotsky A.* Chemical and Environmental Stability of Monazite-Cheralite Solid Solutions  $\text{Ln}_{1-2x}\text{Ca}_x\text{Th}_x\text{PO}_4$  (Ln = Pr, Nd;  $x = 0–0.15$ ): A Thermodynamic Study // Appl. Geochem. 2023. V. 148.

- P. 105504.  
<https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2022.105504>
33. *Arinicheva Y., Popa K., Scheinost A.C., Rossberg A., Dieste-Blanco O., Raison P., Cambriani A., Somers J., Bosbach D., Neumeier S.* Structural Investigations of (La,Pu)PO<sub>4</sub> Monazite Solid Solutions: XRD and XAFS Study // *J. Nucl. Mater.* 2017. V. 493. P. 404–411.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.06.034>
34. *De Groot G.J., Van der Sloot H.A.* Determination of Leaching Characteristics of Waste Minerals Leading to Environmental Product Certification // *Stabilization and Solidification of Hazardous, Radioactive and Mixed Wastes* / Eds. Gilliam T.M., Wiles C.C. V. 2. Philadelphia: ASTM, 1992. P. 149–170.
35. *Torras J., Buj I., Rovira M., de Pablo J.* Semi-Dynamic Leaching Tests of Nickel Containing Wastes Stabilized/Solidified with Magnesium Potassium Phosphate Cements // *J. Hazard. Mater.* 2011. V. 186. P. 1954–1960.  
<https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2010.12.093>
36. *Xue Q., Wang P., Li J.-S., Zhang T.-T., Wang S.-Y.* Investigation of the Leaching Behavior of Lead in Stabilized/Solidified Waste Using a Two-Year Semi-Dynamic Leaching Test // *Chemosphere.* 2017. V. 166. P. 1–7.  
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2016.09.059>
37. *Ding Y., Long X., Peng S., Zhang D., Tan Z., Lu X.* Phase Evolution and Aqueous Durability of Zr<sub>1-x-y</sub>Ce<sub>x</sub>Nd<sub>y</sub>O<sub>2-y/2</sub> Ceramics Designed to Immobilize Actinides with Multi-Valences // *J. Nucl. Mater.* 2017. V. 487. P. 297–304.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.02.024>
38. *Gao X., Huang Y., Teng Y., Yan M., Zhang H., Tuo X., Peng S.* Fabrication and Chemical Durability of Hot-Pressed Na-Bearing Fluorapatite-Type Ca<sub>8</sub>Sm<sub>1-x</sub>Na<sub>x</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>F<sub>2</sub> Ceramic for Immobilization of Trivalent Minor Actinide // *J. Nucl. Mater.* 2018. V. 507. P. 297–305.  
<https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.05.017>