УДК 621.039.73 © 2020

АЛЮМОЖЕЛЕЗОФОСФАТНОЕ СТЕКЛО ДЛЯ ИММОБИЛИЗАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ: ОБОСНОВАНИЕ И ПЕРСПЕКТИВЫ ПРАКТИЧЕСКОГО ИСПОЛЬЗОВАНИЯ

А.В. Фролова, С.С. Данилов, С.А. Куликова, С.Е. Винокуров, Б.Ф. Мясоедов Россия, Москва, Институт геохимии и аналитической химии им. В.И. Вернадского РАН О.И. Стефановская Россия, г. Москва, ФГБУН Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина РАН

Рассмотрено влияние различных компонентов радиоактивных отходов (PAO) (уран, редкоземельные элементы и другие продукты деления, нептуний, плутоний, продукты коррозии) на структуру и свойства алюможелезофосфатного стекла в системе, мол.%: 40 Na₂O, 10 Al₂O₃, 10 Fe₂O₃, 40 P₂O₅. Данное стекло разрабатывается как матрица для иммобилизации высокожелезистых PAO, а также установлена ее перспективность для иммобилизации отходов различного состава.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: РАДИОАКТИВНЫЕ ОТХОДЫ, ИММОБИЛИЗАЦИЯ, КОНСЕРВИРУЮЩАЯ МАТРИЦА, СТЕКЛО, ОТВЕРЖДЕНИЕ

Обращение с радиоактивными отходами (PAO) является одной из важнейших проблем, стоящих перед ядерной отраслью. Самыми опасными среди PAO являются высокоактивные отходы (BAO), образующиеся преимущественно при переработке отработавшего ядерного топлива (OЯT). Также значительный объём BAO накоплен при прошлой оборонной деятельности (так называемые "исторические" отходы) [1]. Последние содержат актиниды, в том числе остаточные количества урана и плутония и минорные актиниды, осколки деления урана, продукты коррозии конструкционных материалов.

Обращение с ВАО включает в себя кондиционирование и удаление отходов в глубинные захоронения. Согласно мультибарьерной концепции обращения с ВАО первым барьером должна быть консервирующая твердая матрица, обладающая высокой механической, гидролитической и радиационной устойчивостью, и соответствующая критериям пригодности на всем протяжении срока эксплуатации хранилища. В настоящее время основной, и единственной используемой в промышленном масштабе, технологией кондиционирования ВАО является остекловывание. В большинстве стран (Франция, США, Великобритания, Германия, Япония, Индия, Южная Корея) для иммобилизации ВАО используют боросиликатное, а в России алюмофосфатное стекло. Боросиликатное стекло более устойчиво к кристаллизации, а алюмофосфатное стекло способно включать поливалентные переходные элементы, сульфаты и хлориды [2]. Для синтеза при температуре до 1000°C химически и кристаллизационно натрийалюмофосфатных устойчивых стёкол, содержащих до 10 масс.% оксидов ВАО, была определена область составов, масс.%: 24–27 Na₂O, 20–24 Al₂O₃, 49–56 P₂O₅ [1]. Изначально выбор алюмофосфатного стекла в России был обусловлен необходимостью включать ВАО преимущественно натрийалюминатного состава от переработки ОЯТ с алюминиевой оболочкой. Однако, следует отметить, что в составе так называемых "исторических" отходов, хранящихся на ФГУП "ПО "Маяк", содержится большое количество железа [1,3]. Следовательно, полученные в результате стекла будут алюможелезофосфатными.

В данной статье приведены результаты наших работ для обоснования оптимального

с точки зрения кристаллизационной и физико-химической стабильности состава натрийалюможелезофосфатного (НАЖФ) стекла в системе Na₂O–Al₂O₃–Fe₂O₃–P₂O₅, а также данные изучения влияние на структуру и свойства стекла различных групп элементов, в том числе редкоземельных элементов (РЗЭ), урана и трансурановых элементов (ТУЭ), некоторых продуктов коррозии и деления.

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНОГО СОСТАВА НАЖФ СТЕКЛА

При выборе состава стеклокомпаунда для иммобилизации высокожелезистых отходов за основу взяли состав, близкий к базовому составу стекла, используемому на vстановке остекловывания ФГУП "ПО "Маяк", мол.%: 40 Na₂O, 20 Al₂O₃, 40 P₂O₅ (или масс.%: 24,3 Na₂O, 20,0 Al₂O₃, 55,7 P₂O₅), состав которого лежит между орто- и пирофосфатным составами [2,4]. В исследованной системе Al₂O₂ эквимолярно замещали на Fe₂O₃: 40 Na²O², (20-x) Al₂O₃, x Fe₂O₃, 40 P₂O₅. Синтез проводили из шихт, приготовленных из сухих реагентов: метафосфат натрия, оксиды алюминия и железа (квалификация чистоты реагентов не ниже "ч.д.а."). Шихты нагревали в кварцевых тиглях в течение 4 ч до 1200 °С с последующей изотермической выдержкой полученных расплавов в течение часа, после чего часть расплава выливали на металлический лист (закалка), а остатки расплава в тиглях охлаждали в отключенной печи до комнатной температуры (отжиг).

В статье [5] показано, что замещение Al_2O_3 на Fe_2O_3 около 10 мол.% (x=10) повышает кристаллизационную устойчивость стекла. Так, стекло с x=10 полностью однородно и рентгеноаморфно, а для стекол, содержащих менее или более 10 мол.% Fe_2O_3 и отожженных при средних температурах, проявляется склонность к частичной кристаллизации (рис. 1).

При изучении фазового состава синтезированных НАЖФ стёкол показано, что стёкла, в которых содержание Fe₂O₃ менее 10 мол.% (x<10), сложены матричной стеклофазой и ортофосфатом алюминия преимущественно в форме фосфотридимита (γ-AlPO₄); в небольшом количестве присутствует фосфокварц (α-AlPO₄) (рис. 1). Стёкла, в которых x>10 оказались значительно закристаллизованными, основной фазой в них является ортофосфат натрия-железа с примесными пирофосфатом натрия-железа и гематита. Установлено, что только стекло, содержащее 10 мол.% Fe_2O_3 , сохраняет аморфную структуру даже при длительном отжиге [5]. Также особо отмечено, что водоустойчивость стёкол повышается при замене до половины Al_2O_3 на Fe_2O_3 , достигает максимума при х=10, а при дальнейшем увеличении содержания Fe_2O_3 – снижается [4]. Таким образом, наиболее гидролитически и кристаллизационно устойчивым является НАЖФ стекло с эквимолярным замещением Al_2O_3 , 10 Fe_2O_3 , 40 P_2O_5 .

Установлено, что облучение закалённых стёкол выбранного состава ускоренными





электронами с энергией 8 МэВ до поглощенной дозы 1 МГр не приводит к заметным изменениям в строении анионной структурной сетки стекла. Так, отдельные изменения в ИК спектрах под действием облучения могут быть вызваны вариациями координационного состояния алюминия и накоплением продуктов радиолиза структурно-связанной и абсорбированной воды в стеклах (рис. 2) [6].

Отмечено, что положение максимума в диапазоне от 600 до 400 см⁻¹ в стеклах практически не зависит от дозы облучения (рис. 2). Спектры стёкол имеют перекрывающееся плечо в диапазоне от 700 до 600 см⁻¹ и имеющие максимум при 650-620 см-1, что обусловлено деформационными колебаниями P-O-Al(Fe) фрагментов структурной сетки стекла и может быть отнесено к валентным колебаниям в группах AlO₄ (AlO₄). В диапазоне 800–700 см⁻¹ присутствуют две перекрывающиеся полосы с максимумами при 740-715 см⁻¹ и 765-750 см⁻¹, связанные с симметричными валентными колебаниями мостиковых Р-О-Р связей и ассиметричных валентных колебаниях в тетраэдрах AlO₄. Электронное облучение до дозы 1 МГр практически не влияет на спектры в пределах 1400-800 см⁻¹ исследуемых стёкол и указывает на радиационную устойчивость стекла выбран-



Рис. 2. ИК-спектры образцов до (спектр 1) и после облучения ускоренными электронами до доз 0,1, 0,5 и 1,0 МГр (спектры 2–4, соответственно)

ного состава по меньшей мере до исследуемых доз [6].

ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ КОМПОНЕНТОВ ВАО НА СТРУКТУРУ И СВОЙСТВА НАЖФ СТЕКЛА

Для изучения влияния на структуру и свойства НАЖФ стекла выбранного состава, мол%: 40 Na₂O, 10 Al₂O₃, 10 Fe₂O₃, 40 P₂O₅, различных групп элементов – компонентов ВАО, синтезировали и исследовали образцы стекла, содержащие весовые количества РЗЭ, U, Pu, Np, Tc или Re как имитатор Tc, Mo, Zr, Cs, Sr (табл. 1).

Поведение РЗЭ при иммобилизации в НАЖФ стекло

При экстракционной переработке ОЯТ после выделения U и Pu P3Э переходят в ВАО; их суммарное содержание в стеклах, полученных при кондиционировании этих ВАО, может достигать 10 масс.% [7].

В работе синтезированы закаленные и отожженные стёкла, содержащие оксиды РЗЭ, которые вводили в виде оксидов элементов в состояниях окисления (II, III, IV), что охватывало спектр возможных степеней окисления лантанидов, а также ТУЭ, в составе ВАО. При изучении фазового состава было установлено, что все образцы закаленных стёкол оказались

Таблица 1

Составы синтезированных НАЖФ стёкол, содержащих весовые количества элементов – компонентов ВАО

Название образцов НАЖФ стекла	Содержание компонентов ВАО
НАЖФ-РЗЭ	1–10 масс.% оксиды РЗЭ – Ce, La, Eu, Pr, Nd, Sm, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Yb, Y
НАЖФ-И	5–50 масс.% U
НАЖФ-Np,Pu	0,5 масс.% Np, Pu
НАЖФ-Re,Tc	1-6 масс.% Re, Tc
НАЖФ-Мо,Zr	1-5 масс.% оксиды Мо, Zr
НАЖФ-Cs,Sr	1 масс.% Cs, Sr

рентгеноаморфными. При этом фазовый состав отожженных образцов отличался. Так, полученные стекла состояли из фаз монацита и ортофосфата натрия-алюминия-железа $Na_3(Fe,Al)_2(PO_4)_3$ (рис. 3). В то же время можно отметить, что образующиеся в стекле кристаллические фазы монацита и ксенотима, образованные в матрице, можно рассматривать как вмещающие фазы для минорактинидов (Ат, Cm) и лантанидов ВАО [9].

При исследовании водоустойчивости синтезированных образцов НАЖФ-РЗЭ стекла отметили, что включение по крайней мере до 10 масс.% оксидов РЗЭ не ухудшает устойчивость закаленных стёкол к выщелачиванию: скорость выщелачивания составляет около (0,1-0,8)·10-6 г/(см²·сут). При этом устойчивость отожженных стёкол снижается по сравнению с закаленными стеклами – значения скоростей выщелачивания компонентов стёкол увеличиваются в 2-40 раз [8], что обусловлено образованием растворимого ортофосфата натрия в стёклах. В то же время скорости выщелачивания РЗЭ остаются на низком уровне, что, очевидно, объясняется включением РЗЭ в кристаллические фазы со структурой монацита или ксенотима. Известно, например, что из-за высокого содержания U и Th многие природные монациты в течение геологического времени подвергались значительному облучению в результате альфа-распада (некоторые найденные образцы старше двух миллиардов лет). Несмотря на большие дозы облучения естественный монацит обычно находится в кристаллическом состоянии. Таким образом, можно предполагать, что частичная кристаллизация НАЖФ стёкол не будет препятствует надежной иммобилизации минорактинидов и РЗЭ и безопасному окончательному захоронению полученных стеклокомпаундов.

Влияние урана на состав, структуру и водоустойчивость НАЖФ стекла

Несмотря на то, что переработка ОЯТ направлена на максимальное выделение U и Pu для возврата делящихся компонентов в цикл, некоторое количество U остаётся в отходах. В



Рис. 3. СЭМ-изображения образцов, содержащих 5 масс.% CeO₂ (а,б), Eu₂O₃ (в,г), полученных медленным охлаждением (отжигом) расплавов

зависимости от технологии переработки ОЯТ содержание урана в консервирующих матрицах может варьироваться в широких пределах, вплоть до достаточно высоких значений при извлечении только Ри. В этой связи представлялось значимым изучить НАЖФ стекло с весовыми количествами урана (до 50 масс.%), что позволило детально изучить поведение урана, состав фаз и структуру стекла.

Фактические составы синтезированных стёкол практически соответствовали расчётным составам [10]. При определении степени окисления урана в полученных стеклах установлено, что уран находится в виде сложного оксида UO₂ следующего состава, ат.%: 0,3 U⁴⁺, 68 U⁵⁺, 31 U⁶⁺ (рис. 4.). Так как в составе показано незначительное количество U⁴⁺, то можно сделать вывод, что в НАЖФ стеклах уран присутствует в форме кластеров [UO₂ⁿ⁺O_m]^{k-}, где n=1 или 2, m=4,5 или 6 [11]. Можно отметить, что степень окисления урана в исследованных стеклах такая же, какой



Рис. 4. Спектры XANES L₃ края поглощения урана в стеклах

может быть в сложных натуральных или искусственных оксидах. Среди оксидов урана можно выделить бертоллиды и дальтониды. В бертоллидах изменение состава происходит из-за поглощения кислорода (UO_{2+x}) или потери урана. (U_{1-y}O₂). Четкой границы в оксидах между бертоллидами и дальтонидами нет [10].

Было установлено, что характеристики выщелачивания компонентов из синтезированных урансодержащих образцов НАЖФ стекла зависят от состава стекол, в частности, от формы вводимого оксида урана и его количества, и, вероятно, связаны с особенностями строения анионной матрицы структурной сетки стекол. При этом зависимости величин нормированной потери массы и скорости выщелачивания натрия и других элементов от состояния окисления и содержания урана в стеклах имеют сложный характер. Это обусловлено структурными перестройками в анионной матрице сетки стекла, особенно при высоких концентрациях урана, введенного в исходную шихту в форме уранилнитрата [10]. Сравнение определенных нами величин скорости выщелачивания с литературными данными показывает, что гидролитическая устойчивость изученных урансодержащих стёкол находится на том же уровне, что и для ранее изученных алюмофосфатных стёкол других составов [12], а также железофосфатных стёкол как упрощенного состава, так и содержащих имитированные ВАО площадок Айдахо и Хэнфорда [13,14].

Поведение плутония и нептуния в НАЖФ стекле

Очевидно, что после распада Cs и Sr основную опасность в ВАО будут представлять именно долгоживущие высокотоксичные ТУЭ. В связи с этим представляло особый интерес изучить влияние весовых количеств плутония и нептуния на качество НАЖФ стекла. Известно, что актиниды в стеклах могут иметь различное состояние окисления и координационное окружение по кислороду [15], а координационная химия нептуния и плутония является наиболее сложной. Изучение состояния этих элементов, а также их способности к выщелачиванию из стёкол имеет значение для прогнозирования их поведения в процессе долговременного хранения остеклованных актинидсодержащих ВАО.

Было установлено, что в НАЖФ стёклах нептуний, иммобилизованный в количестве 0,5 масс.%, присутствует преимущественно в виде Np(IV) в форме ионов Np⁴⁺ (70–80 % от общего содержания) и меньшего количества Np(V) в форме ионов нептуноила NpO₂⁺ (рис. 5.). Плутоний, введённый в стекло в том же количестве, присутствует как Pu(IV) и Pu(III) в виде ионов Pu⁴⁺ и Pu³⁺ в кислородном окружении с N≈6–8 и, вероятно, Pu(V) в форме плутоноила PuO₂⁺ с N≈5,5–6,0 [15].

Значения нормализованных скоростей выщелачивания Np и Pu различаются примерно на порядок величины: 10⁻⁸ и 10⁻⁹ г/(см²·сут) соответственно. Причиной этого является различие в степени окисления элементов. Так, наиболее выщелачиваемым является нептуний, часть которого, как было показано по данным на рис. 5, присутствует в стёклах в виде иона Np(V), обладающего высокой мобильностью. Значительно меньшие скорости выщелачивания наблюдаются для плутония, для которого основным состоянием окисления является Pu(IV) и который присутствует в виде ионов Pu^{4+} , а дополнительным – Pu(III) – ионы Pu^{3+} . Значения и характер зависимости скорости выщелачивания от времени ионов америция, который также включали в стекла и присутствует в виде Am(III) и Am(IV), аналогично таковому для плутония [8].

Поведение технеция при иммобилизации в НАЖФ стекло

В составе ВАО содержится значительное количество продуктов деления, в том числе ⁹⁹Тс с большим периодом полураспада $(T_{12} = 213 \ 000 \ \text{лет})$, например, содержание ⁹⁹Tc в ОЯТ ВВЭР-1000 1,38 мг на 1 г U спустя 8 лет выдержки [16]. Летучесть большинства соединений Тс осложняет его остекловывание, так как температура кипения Тс₂O₇ составляет 311 °C, а TcO, сублимируется при 900-1000 °C. В связи с этим, число литературных источников по остекловыванию технеший содержаших отходов крайне ограничено, что определило актуальность исследования возможности иммобилизации Тс в НАЖФ стекло. По этой причине синтез данных образцов проводился при более низкой температуре – 900–950 °С.

В предварительных исследованиях на примере Re как имитатора поведения Tc было установлено, что включение Re в НАЖФ стекло как в окислительных, так и в восстановительных условиях не приводит к заметным изменениям в решетке стекла. Re присутствует в стеклофазе в виде Re(VII) и в металлической фазе как Re(0) [17]. Показано, что включение Re и Tc в стекло составляет до 70 % от введённого в шихту количества. Так, стеклофаза ренийсодержащего образца содержала до 2,23 масс.% Re [18]. Установлено, что скорость выщелачивания



Рис. 5. РФЭС-спектры образцов НАЖФ стекла, содержащих 0,5 масс.% Ри и Np



Рис. 6. Кинетические кривые выщелачивания Re и Na из стекла, содержащего Re, при 90 °C в соответствии с ГОСТ Р 52126–2003

структурообразующих элементов – Na, Al, Fe и P – не изменяется в зависимости от количества иммобилизованного рения и составляет около 10-6 г/(см2·сут), что соответствует скорости выщелачивания компонентов из стекла базового состава (рис. 6) [19].

Поведение продуктов коррозии, а также Cs и Sr в НАЖФ стекле

Помимо железа в отходах содержатся и другие продукты коррозии, в частности переходные металлы. На примере Ni было рассмотрено влияние переходных металлов на свойства НАЖФ стекла. Установлено, что добавление оксида никеля сверх добавленного оксида железа негативно сказывается на кристаллизационной устойчивости, что становится очевидным при отжиге стекла. Это связано со смещением на диаграмме составов $Na_2O-(Al_2O_3+Fe_2O_3)-P_2O_5-$ стёкол, которое приводит к тому, что данные стекла не являются устойчивыми к кристаллизации. Из полученных данных можно было предположить, что более эффективной будет пропорциональная замена Fe₂O₂ на оксиды переходных металлов, вплоть до полного исключения Fe₂O₂ [20].

Среди продуктов коррозии особо выделяют молибден и цирконий, которые в силу своих физико-химических свойств не способны надежно включаться в структуру стёкол, а



Рис. 7. Компьютерное разложение ИК-спектров образцов с цезием и стронцием в диапазоне 1600–800 см⁻¹

также затрудняют иммобилизацию в стекло других элементов. Нами было показано, что включение до 5 масс.% MoO₃ и до 1 масс.% ZrO₂ в НАЖФ стекло не приводит к образованию самостоятельных кристаллических фаз. Стекла, содержащие такие количества Мо и Zr, обладают аморфной структурой и низкими скоростями выщелачивания элементов – на уровне 10⁻⁶ г/(см²·сут) [21].

Особое внимание в работе было уделено поведению Cs и Sr в НАЖФ стекле. Показано, что синтезированные образцы НАЖФ-Сs, Sr оказались однородными; разложение их ИК-спектров в области 1600-800 см⁻¹ приведено на рис. 7. Отмечено, что фосфатному каркасу свойственны широкие полосы поглощения, свойственные аморфному состоянию, с наиболее интенсивной полосой, лежащей в диапазоне 1150-1250 см-1, что говорит о преобладании тетраэдров с двумя мостиковыми ионами кислорода, что говорит преимущественно о целевой пирофосфатной структуре стекла. Включение Čs и Sr не привело к ухудшению гидролитических свойств матрицы, скорости выщелачивания элементов составляют порядка 10⁻⁶ г/(см²·сут), что соответствует нормативным требованиям к отверждённым ВАО.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основании результатов наших выполненных исследований показано, что НАЖФ стекло в системе, мол.%: 40 Na₂O, 10 Al₂O₂, 10 Fe₂O₂, 40 P₂O₅, обладает высокой кристаллизационной, радиационной и гидролитической устойчивостью при включении различных компонентов ВАО. Таким образом, изученное стекло является перспективным и универсальным компаундом для иммобилизации ВАО, применение которого возможно в промышленном масштабе.

БЛАГОДАРНОСТИ

Соавторы сердечно поздравляют академика Мясоедова Бориса Федоровича с 90-летним Юбилеем.

Авторы С особой благодарностью вспоминают безвременно ушедшего проф. Стефановского Сергея Владимировича и посвящают ему настоящую статью.

ЛИТЕРАТУРА

1. Озиранер С.Н., Минаев А.А., Кузнецов Д.Г., Прохорова Н.П. <u>Название??????????????</u> Матер. IV научно-технич. конф. СЭВ. Москва, 22-23 декабря 1976 г. - М.: Атомиздат, 1978. -C. 94–102.

2. Стефановский С.В., Стефановская О.И., Винокуров С.Е. и др. Фазовый состав, структура и гидролитическая устойчивость стёкол системы Na₂O-Al₂O₃-(Fe₂O₃)-P₂O₅ при заме-щении Al₂O₃ на Fe₂O₃ // Радиохимия. – 2015. – T. 57. $- N_{2}^{2}4. - C. 295.$

3. Глаголенко Ю.В., Дрожко Е.Г., Ровный С.И. Основные направления деятельности ФГУП "ПО "Маяк" по решению экологических проблем, связанных с прошлой и текущей деятельностью ФГУП "ПО "Маяк"// Вопросы радиац. безопасности. – 2006. – № 1. – С. 23–34.

4. Стефановский С.В., Стефановская О.И., Кадыко М.И. и др. Влияние условий синтеза на фазовый состав и структуру натрий-алюмо-железофосфатных стёкол // Вопросы радиац. безопасности. – 2015. – № 3. – С. 56–66. 5. Stefanovsky S.V., Stefanovsky O.I., Kadyko

M.I. et al. The effect of Fe₂O₃ substitution for Al₂O₃

on the phase composition and structure of sodiumaluminum-iron phosphate glasses // J. of Non-Crystalline Solids. – 2015. – T. 425. – C. 138–145. 6. Стефановский С.В., Пресняков И.А., Соболев А.В. и др. Влияние облучения ускоренными электронами на состояние окисления железа и натрий-алюмо-железо-фосфатных структуру стёкол // Физика и химия обработки материалов. – 2016. – № 6. – С. 25–41.

7. Chemical Durability and Related Properties of Solidified High-Level Waste Forms: Tech. Rep.

Ser. – Vienna: IAEA, 1985. – No. 257. – 168 p. 8. Danilov S.S., Stefanovsky S.V., Stefanovskaya O.I. et al. Aluminum (Iron) Phosphate Glasses Containing Rare Earth and Transuranium Elements: Phase Composition, Oxidation State of Np and Pu, and Hydrolytic Durability // Radiochemistry. -2018. – T. 60. – No. 4. – C. 434–439. 9. Vereshchagina T. A., Vasilieva N.G., Anshits

A.G. Geoecological Approach to the Choice of Mineral-Like Matrices as Radionuclide Containers for Permanent Burial in Granitoids // Chemistry for Sustainable Development. - 2008. - No. 16. -P. 359-373.

10. Данилов С.С., Винокуров С.Е., Стефановский С.В., Мясоедов Б.Ф. Гидролитическая устойчивость урансодержащих натрийалюмо (железо) фосфатных стёкол // Радиохимия. -2017. – T. 59. – № 3. – C. 226–229.

11. Maslakov K. I., Teterin Yu. A., Stefanovsky S.V. et al. XPS study of uranium-containing sodiumaluminum-iron-phosphate glasses // J. of Alloys and Compounds. – 2017. – V. 712. – P. 36–43.

12. Day D.E., Ray C.S. A Review of Iron Phosphate Glasses and Recommendations for Vitrifying Hanford Waste. Report INL/EXT-13-30839. Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA, 2013.

13. Day D.E., Wu Z., Ray C.S., Hrma P. Chemically durable iron phosphate glass wasteforms // J. Non-Cryst. Solids. – 1998. – V. 241. – No. 1. – P. 1–12. 14. Fukui T., Ishinomori T., Endo Y. Iron Phosphate Glass as Potential Waste Matrix for High-Level Radioactive Waste // Waste Management. - 2003. 15. Стефановский С. В., Маслаков К.И., Тетерин Ю.А. и др. Состояние окисления нептуния и плутония и их выщелачивание из натрий-

алюмо-(железо) фосфатных стёкол // Доклады AH. – 2018. – T. 478. – № 2. – C. 175–178.

16. Fedorov Yu.S., Kulyako Yu.M., Blazheva I.V.

et al. Dissolution of WWER-1000 spent nuclear fuel in a weakly acidic solution of iron nitrate and recovery of actinides and rare earth elements with TBP solutions // Radiochemistry. – 2016. – T. 58. – № 3. – C. 265–270.

17. Stefanovsky S.V., Prusakov I.L., Stefanovsky O.I. et al. The structure of rhenium-containing sodium alumino (iron) phosphate glasses // International J. of Applied Glass Science. – 2019. – T. 10. – No. 4. – C. 479–487.

18. Фролова А.В., Данилов С.С., Куликова С.А., Тюпина Е.А. Изучение структуры и гидролитической устойчивости натрийалюможелезофосфатного стекла, содержащего перренат калия // Успехи в химии и химической технологии. – 2019. – T. 33. – \mathbb{N}_{9} 9. – C. 7–9. 19. Danilov S., Kulikova S., Frolova A., Vinokurov

S. Sodium alumino-iron phosphate glass application

for immobilizing technetium containing waste // ChemCys 2020. – Blankenberge, Belgium, 19–21 February, 2020. – P. 65.

20. Данилов С.С., Фролова А.В., Тюпина Е.А., Винокуров С.Е. Изучение структуры натрийалюмофосфатного стекла при включении переходных металлов // Успехи в химии и химической технологии. - 2019. - Т. 33. - № 1. -C. 38-40.

21. Фролова А.В., Данилов С.С., Кононкова Н.Н. и др. Влияние молибдена и циркония на структуру и гидролитическую устойчивость алюмофосфатного стекла для иммобилизацими радиоактивных отходов // Физикохимия. - 2018: XIII Конференция молодых ученых, аспирантов и студентов ИФХЭ РАН. Сб. тезисов докладов. -2018. - C. 242-244.