

УДК 546.05

ПОЛУЧЕНИЕ НАНОРАЗМЕРНОГО ПОРОШКА $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ И КЕРАМИКИ НА ЕГО ОСНОВЕ С ПРИМЕНЕНИЕМ ЗОЛЬ-ГЕЛЬ СИНТЕЗА И ИСКРОВОГО ПЛАЗМЕННОГО СПЕКАНИЯ

© 2024 г. О. О. Шичалин^а, *, Е. К. Папынов^а, А. А. Белов^а, К. А. Перваков^а,
С. С. Грибанова^а, С. М. Писарев^а, А. Н. Федорец^а, А. В. Погодаев^а, А. О. Лембиков^а,
Я. Г. Зернов^а, П. А. Мармаза^а, О. В. Капустина^а, Е. А. Гридасова^а, И. Ю. Буравлев^а

^аДальневосточный федеральный университет, п. Аякс, 10, о. Русский, Владивосток, 690922 Россия

*e-mail: oleg_shich@mail.ru

Поступила в редакцию 22.11.2023 г.

После доработки 27.12.2023 г.

Принята к публикации 28.12.2023 г.

Применение керамики в качестве матриц для иммобилизации радионуклидов с целью безопасного долговременного их захоронения или полезного использования изучается с акцентом на фазовую устойчивость, структурную целостность, гидролитическую стойкость и др. В настоящей работе исследован комбинированный подход, основанный на цитратном золь-гель синтезе наноразмерного порошка $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ и его последующем искровом плазменном спекании с получением плотной керамики. Методами РФА и РЭМ изучен фазовый состав и структура наноразмерного порошка $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ и образцов керамики на его основе, полученных в интервале температур 900–1300°C. Показано, что условия синтеза порошка обеспечивают формирование наноразмерного зерна кристаллического $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, консолидация которого в условиях искрового плазменного разогрева протекает с изменением фазового состава от монофазы $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ моноклинной структуры до орторомбической с примесью LaTiO_3 при температуре >1200°C. Выявлено, что изменение структуры керамики сопровождается формированием непористых и бездефектных монолитных образцов. Установлено, что подобное изменение приводит к повышению относительной плотности (81.3–95.7%) и прочности при сжатии (78–566 МПа) образцов керамики. Однако происходит снижение гидролитической стойкости керамики, на что указывает увеличение скорости выщелачивания La^{3+} от 10^{-7} до 10^{-5} г/(см² сут). Полученные данные полезны для системного исследования материалов, пригодных для технологий иммобилизации радиоактивных отходов в керамику.

Ключевые слова: керамика, радионуклиды, обращение с радиоактивными отходами, золь-гель синтез, ИПС

DOI: 10.31857/S0044457X24040198, EDN: ZWWKGM

ВВЕДЕНИЕ

Для решения проблем обращения с радиоактивными отходами (РАО) в части их эффективно-кондиционирования наряду с боросиликатным стеклом активно исследуется кристаллическая керамика ввиду ее химической, гидролитической, радиационной и механической стойкости [1]. В последние десятилетия рассмотрено множество высокостабильных и долговечных матриц на основе монофазных или сборных керамик, среди которых в качестве потенциальной матрицы для иммобилизации РАО перспективу представляет керамика типичной стехиометрии пироклора $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$ [2, 3]. Рассматривается титанатный пироклор составов $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ и $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ благодаря его хорошим характеристикам по устойчивости к выщелачиванию

радионуклидов, высоким термодинамическим и механическим характеристикам, а также устойчивости к радиационному воздействию [4–6]. Кроме того, гибкая кристаллическая структура пироклора способна удерживать широкий спектр редкоземельных элементов, что позволяет фиксировать сложные радионуклиды [7, 8]. Пироклор обладает способностью размещать элементы ряда лантаноидов и актиноидов в восьмикоординатном А-сайте и шестикоординатном В-сайте. Известны исследования, где моделируемая радиоактивная загрязненная почва (моделируемый нуклид Ce^{3+}) была успешно иммобилизована в течение 5 мин с помощью серии форм отходов на основе $\text{Gd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, приготовленных методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза (СВС) [9], а также

исследование, где моделируемый радионуклид Sr^{2+} включен в ту же матрицу [10]. Кроме того, в ряде работ [11–14] сообщается, что матрицы на основе пирохлора $\text{Gd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ обладают не только высокой степенью химической стойкости, но и достаточной радиационной устойчивостью. Причина различных величин рассмотренных в работах параметров кроется в размерности полученных материалов, которая зависит как от метода подготовки реакционной смеси, так и от метода консолидации ее в керамику.

В настоящее время встает вопрос о необходимости найти простой и быстрый способ иммобилизации сложных ядерных отходов в стабильную керамическую матрицу. Иммобилизация сложных отходов с многовалентными нуклидами путем смешивания их оксидов с порошками Gd_2O_3 перед традиционным спеканием проводилась во многих работах [15, 16]. Однако в этом случае требуется тщательная и сложная проработка с учетом валентности и радиуса как собственных, так и чужеродных ионов, что достаточно сложно, поскольку приходится иметь дело с комплексными компонентами отходов. Более того, это лишает технологию иммобилизации возможности практического применения, поскольку речь идет о различных типах отходов без учета изменчивости компонентов. Поэтому представляется целесообразным найти прямой путь иммобилизации нуклидов в материалах типа пирохлора.

В качестве альтернативы твердофазному синтезу появился ряд сольватных методов, включая золь-гель химию, обладающих особыми преимуществами, которые заключаются в возможности получения твердого материала из химически однородного прекурсора [17]. Таким способом можно получить ряд сложных соединений, в том числе сложные оксиды, при более низких температурах синтеза и меньшем времени процесса. Кроме того, золь-гель метод обеспечивает высокий контроль за морфологией и размером частиц. Следует учесть, что обычно радиоактивные отходы, содержащие лантаноиды, находятся в жидкой фазе, использование золь-гель метода приближает нас к реальному практическому применению рассматриваемой методики.

В нашей предыдущей работе исследован золь-гель синтез минералоподобной керамики на основе SrTiO_3 со структурой перовскита, перспективной для иммобилизации радионуклидов Sr-90 , с применением технологии искрового плазменного спекания (ИПС) [18]. В данной работе показано, что полученный композитный материал имеет высокие параметры химической стойкости, а также высокие эксплуатационные физико-механические

характеристики, несмотря на то что исходный порошок имеет наноразмерную структуру.

Цель настоящей работы – золь-гель синтез наноразмерного порошка $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ структуры пирохлора для его эффективной консолидации в высокоплотную керамику по технологии искрового плазменного спекания, включая изучение физико-химических и механических характеристик керамики, а также ее гидролитической стойкости с целью выявления перспективы для возможного использования в качестве матриц для иммобилизации радионуклидов.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Реактивы. Для синтеза использовали следующие реактивы: нитрат лантана ($\text{La}(\text{NO}_3)_3$, 99.9%), хлорид титаната (TiCl_3 , раствор 15%).

Синтез порошков оксидов по модифицированному методу Печини (стехиометрия $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$). В 15 мл воды растворяли 7.65 г $\text{La}(\text{NO}_3)_3$ и добавляли 18.2 г 15%-ного раствора TiCl_3 . Раствор нагревали до 90°C и упаривали. Спустя 30 мин от начала синтеза при перемешивании на магнитной мешалке добавляли 16.89 г лимонной кислоты и 5.41 мл моноэтиленгликоля. Полученную смесь упаривали при перемешивании в течение 1 ч при температуре 90°C до образования вязкого геля. Далее гель отжигали на воздухе в течение 2 ч при температуре 400°C для удаления органической части, а затем прокаливали на воздухе 2 ч при 800°C для удаления остаточного углерода.

Получение керамических материалов на основе $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. Синтез керамики проводили методом ИПС путем консолидации порошков на установке SPS-515S фирмы Dr.Sinter LABTM (Япония). Навеску 3 г порошка помещали в графитовую пресс-форму (рабочий диаметр 15.3 мм), подпрессовывали (давление 20.7 МПа), далее заготовку помещали в вакуумную камеру (10^{-5} атм) и спекали. Разогрев спекаемого материала осуществляли униполярным низковольтным импульсным током в режиме On/Off с периодичностью 12 импульсов/2 паузы, т.е. длительность пакета импульсов составляла 39.6 мс, пауза – 6.6 мс. Температуру процесса ИПС контролировали с помощью оптического пирометра (нижний предел определения 650°C), сфокусированного на отверстие, расположенное на середине плоскости внешней стенки пресс-формы глубиной 5.5 мм. Для предотвращения припекания консолидируемого порошка к пресс-форме и плунжеру, а также для беспрепятственного извлечения полученного образца использовали графитовую

фольгу толщиной 200 мкм. Пресс-форму обрачивали в теплоизолирующую ткань для снижения потерь тепла при разогреве. Геометрические размеры полученных образцов матриц цилиндрического типа: диаметр 15 мм, высота 4–10 мм (в зависимости от режимов спекания).

ИПС-консолидацию порошков проводили при температурах 900, 1000, 1100, 1200 и 1300°C. Скорость разогрева определялась стадиями: в диапазоне температур от 0 до 650°C она составляла 300 град/мин, от 650°C и выше (рабочая область пирометра) – 50 град/мин. Образец выдерживали при максимальной температуре 5 мин и далее охлаждали до комнатной температуры в течение 30 мин. Давление прессования составляло 25 МПа.

Подготовка керамики перед исследованием. Для удаления графитовой фольги с поверхности образцов керамики первоначально проводили грубую полировку с использованием наждачной бумаги из карбида кремния с зернистостью US CAMI 80, 120 и 240 (производство Allied High Tech Products, Inc., Compton, CA, США). Затем осуществляли тонкое полирование наждачной бумагой из карбида кремния с размерами зерен US CAMI 400, 600, 800 и 1200. На завершающей стадии образцы полировали с использованием коллоидной алмазной суспензии с размером абразивных частиц 9, 3, 1 м и 0.04 мкм (производство Allied High Tech Products, Inc., Compton, CA, США) на полировальном станке Presi Mecatech 234 (Eybens, Франция).

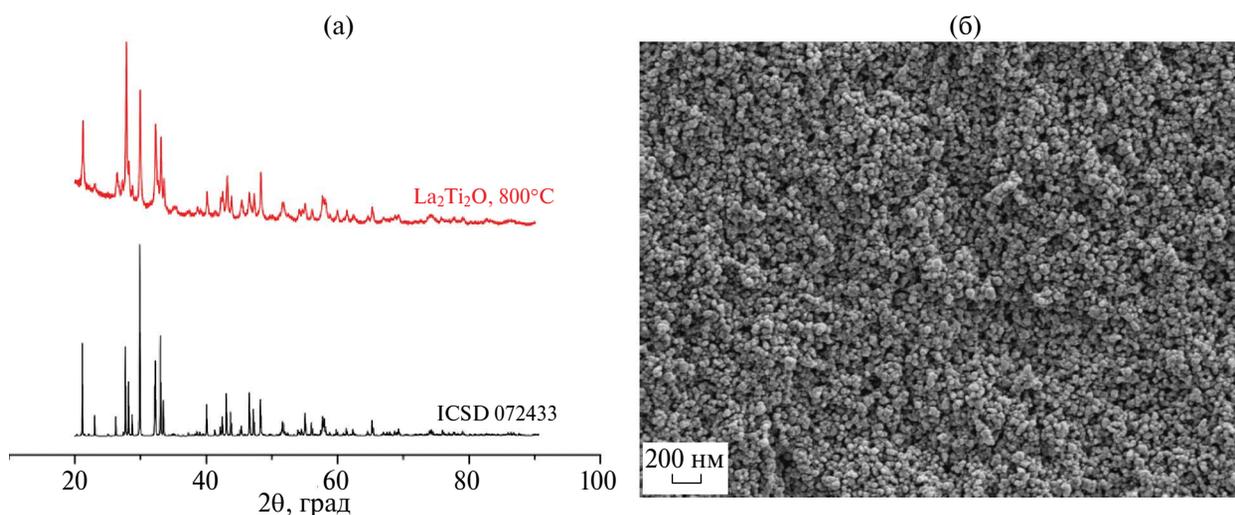


Рис. 1. Дифрактограмма (а) и РЭМ-изображение (б) исходного порошка.

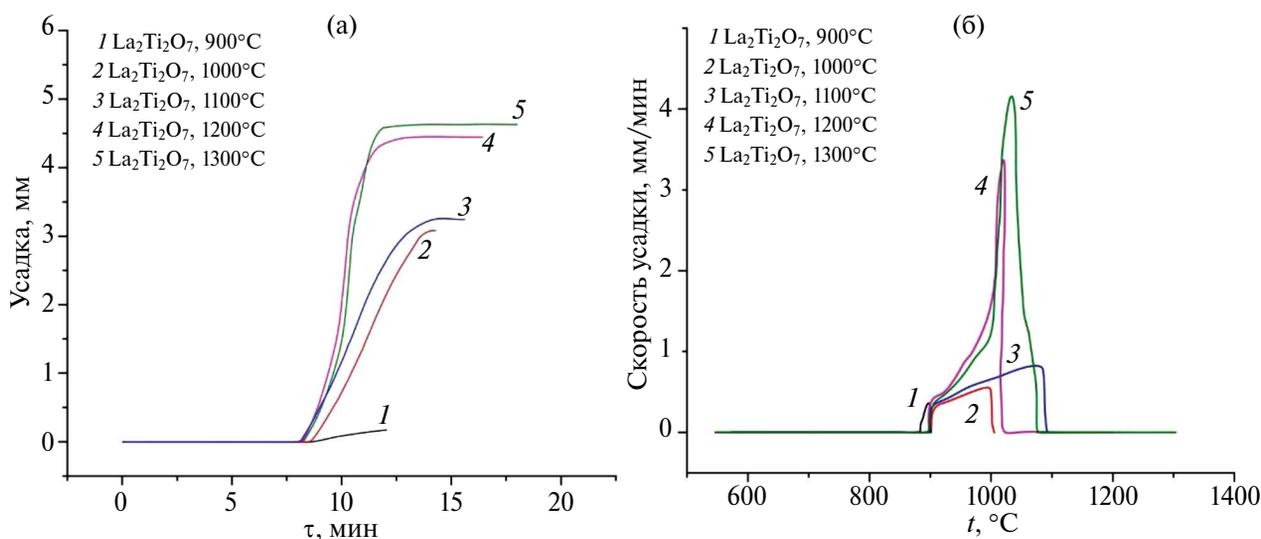


Рис. 2. Динамика консолидации порошка $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ в виде зависимости усадки от времени (а) и температуры (б).

Методы исследования. Концентрацию лантана в фильтратных растворах определяли методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной плазмой на спектрометре Agilent 8800 (Agilent Techn., США). Растровую электронную микроскопию (РЭМ) проводили на микроскопе CrossBeam 1540 XВ Carl Zeiss (Jena, Германия), оснащенном приставкой для энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии фирмы Bruker (Mannheim, Германия). Рентгенофазовый анализ (РФА) проводили на дифрактометре Colibri (Москва, Россия). Экспериментальную плотность ($\rho_{\text{эксп}}$) измеряли методом гидростатического взвешивания на весах Adventurer TM компании OHAUS Corporation (Parsippany, New Jersey, США). Относительную плотность ($\rho_{\text{отн}}$) рассчитывали как отношение экспериментальной плотности ($\rho_{\text{эксп}}$) к теоретической плотности ($\rho_{\text{теор}}$). Прочность при сжатии ($\sigma_{\text{сж}}$) оценивали на разрывной машине Autograph AG-X 100 кН (Shimadzu, Япония).

Оценка гидrolитической стабильности матриц $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. Гидролитическую устойчивость оценивали путем контроля скорости выщелачивания лантана при длительном контакте (30 сут) образцов керамики с дистиллированной водой (рН 6.8) при 25°C в статических условиях по ГОСТ Р 52126–2003 “Отходы радиоактивные. Определение химической устойчивости отвержденных высокоактивных

отходов методом длительного выщелачивания” (международный аналог ANSI/ANS 16.1). В частности, образец керамики в форме цилиндра (диаметр 15 мм, высота 4 мм) помещали в 55 мл дистиллированной воды и через определенный промежуток времени (1–30 сут) измеряли концентрацию La в надосадочной жидкости, а образец извлекали, промывали дистиллированной водой и помещали в свежую порцию дистиллированной воды. Скорость выщелачивания рассчитывали по следующему уравнению:

$$R_n^{\text{La}} = \frac{m_n^{\text{La}}}{M_0^{\text{La}} t_n S},$$

где R_n^{La} – скорость выщелачивания La, г/(см² сут); m_n^{La} – масса La, вымытого за n -ый интервал времени, г; M_0^{La} – массовая концентрация La в матрице, г/г; S – площадь поверхности образца, см²; t_n – время n -ного интервала, сут.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Методом РФА (рис. 1а) установлено, что полученный в результате золь-гель синтеза порошок представляет собой монофазный $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ моноклинной сингонии, пр. гр. $P2_1$ (карточка ICSD 072433). Параметры решетки: $a = 7.812$,

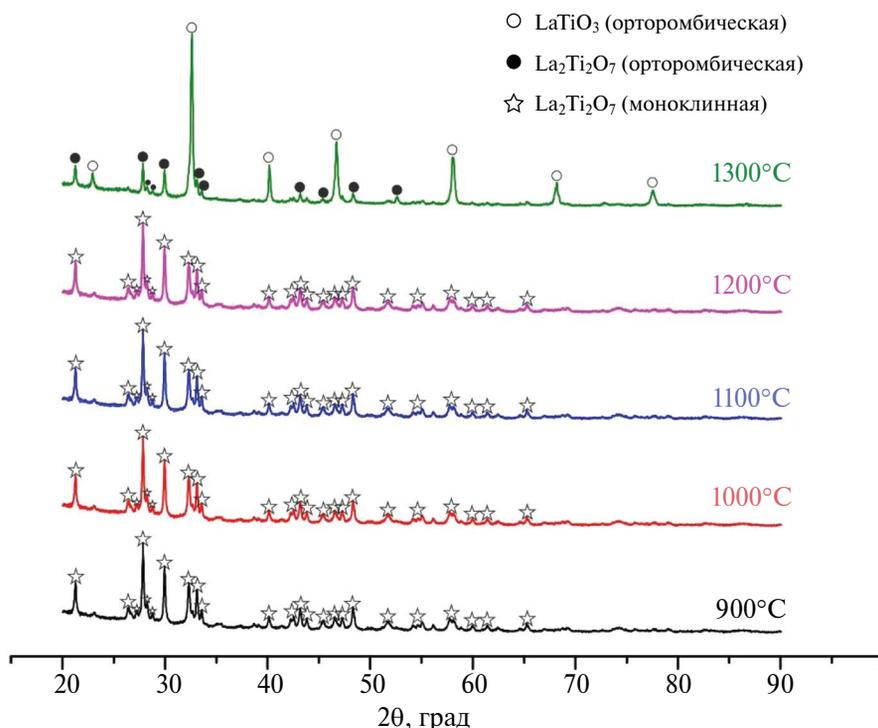


Рис. 3. Дифрактограммы образцов керамики, полученных при различных температурах ИПС.

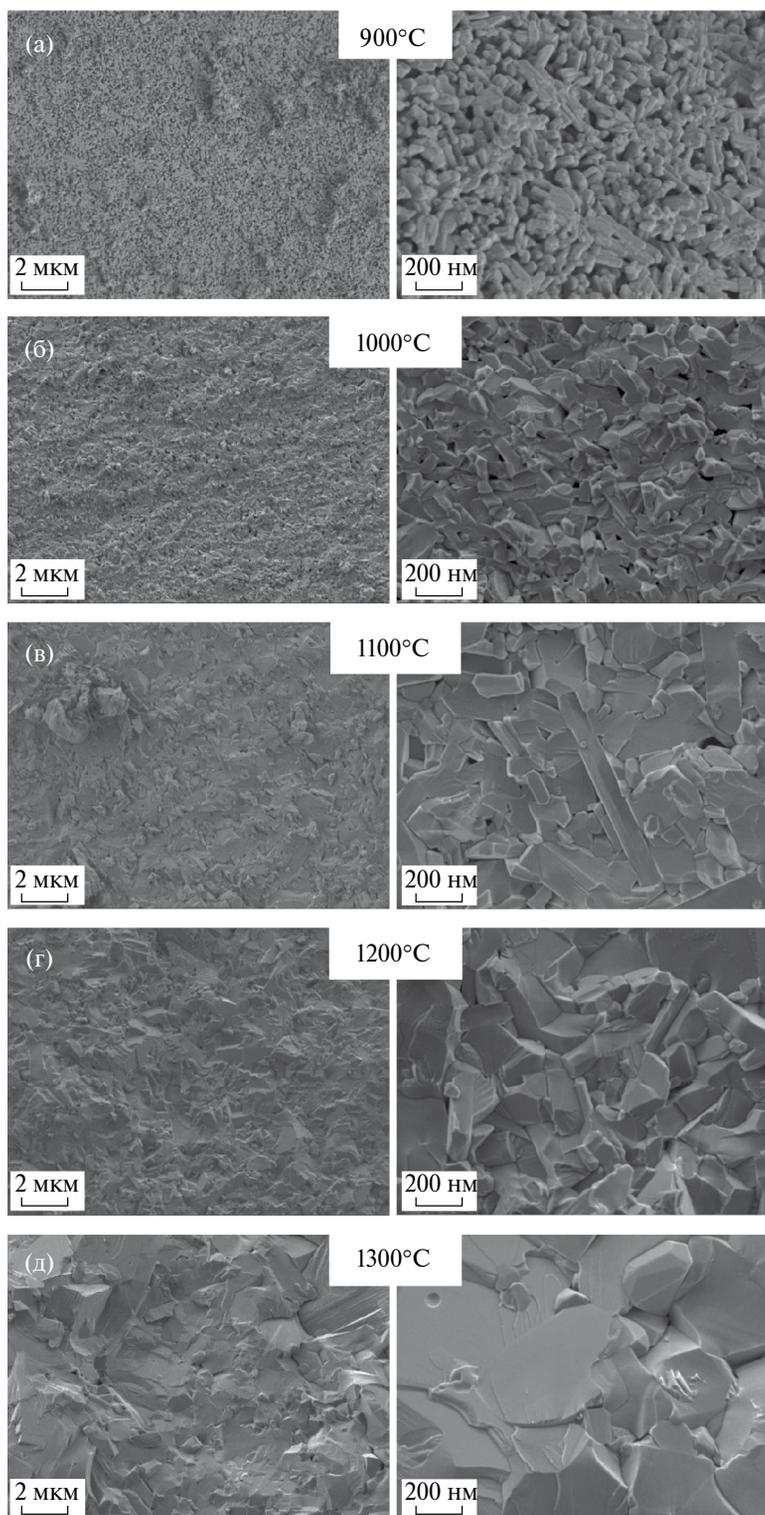


Рис. 4. РЭМ-изображения образцов $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, полученных при различных температурах ИПС.

$b = 5.544$, $c = 13.01$ Å. Объем элементарной ячейки $V = 563.46$ Å³. РЭМ-изображение исходного порошка (рис. 1б) указывает на гомогенное наноразмерное распределение частиц.

Полученные при консолидации порошка dilatометрические зависимости представлены на рис. 2. Установлено, что усадка полученного золь-гель синтезом порошка протекает в одну

стадию и с ростом температуры спекания величина усадки возрастает (рис. 2а). Основная усадка протекает в диапазоне температур 900–1100°C, и скорость усадки возрастает с повышением температуры спекания (рис. 2б). Выявлено, что увеличение температуры спекания выше 1100°C не приводит к изменению скорости усадки. Максимальные значения усадки и скорости консолидации достигаются для образца, полученного при 1300°C (рис. 2, кривая 5). Однако разница в значениях между образцами, полученными при 1200 и 1300°C (рис. 2, кривые 4, 5), незначительная.

Результаты XRD-анализа представлены на рис. 3, из которого видно, что в диапазоне температур 900–1200°C образцы представлены монофазным составом моноклинной сингонии (пр. гр. *P21*). Дальнейшее повышение температуры сопровождается переходом на орторомбический $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ (пр. гр. *Pna21*) и орторомбический LaTiO_3 (пр. гр. *Pbnm*). Высокая интенсивность пиков образца, полученного при 1300°C, говорит о высокой степени кристалличности фазы LaTiO_3 . По-видимому, изменения в дилатометрических зависимостях для образца, полученного при 1300°C (рис. 2), связаны с изменением фазового состава, поскольку не наблюдается значительной разницы в значениях усадки между кривыми 4 и 5, в отличие, например, от кривых 4 и 3.

На рис. 4 представлены РЭМ-изображения сколов образцов $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$, полученных при различных температурах ИПС. Морфология поверхности образца керамики, полученной при 900°C, представлена консолидированными наноразмерными частицами с высокой межзеренной пористостью, в том числе наблюдаются крупные агломераты частиц (рис. 4а). Это указывает на начальную стадию спекания частиц, при которой не достигается максимальная плотность их упаковки. Пористость в керамике сохраняется также в структуре образца, полученного при 1000°C, однако количество пор значительно снижается (рис. 4б). Дальнейшее повышение температуры до 1300°C сопровождается активным спеканием и формированием монолитной структуры керамики (рис. 4в–4д). На поверхности сколов образцов отсутствуют видимые дефекты (поры и трещины).

Результаты физико-механических исследований приведены в табл. 1. Согласно представленным данным, плотность и механическая прочность образцов керамики коррелируют с ростом температуры, достигая максимальных значений при высокой температуре спекания – 95.67% и 566.17 МПа соответственно.

Таблица 1. Физико-механические параметры образцов керамики, полученных при различных температурах ИПС. $T_{\text{ИПС}}$ – температура искрового плазменного спекания; $\rho_{\text{эксп}}$ – экспериментальная плотность; $\sigma_{\text{сж}}$ – прочность при сжатии; $\rho_{\text{отн}}$ – относительная плотность

$T_{\text{ИПС}}, ^\circ\text{C}$	$\rho_{\text{эксп}}, \text{г/см}^3$	$\sigma_{\text{сж}}, \text{МПа}$	$\rho_{\text{отн}}, \%$
900	4.7	78	81.3
1000	5.3	405	91.3
1100	5.5	267	95.5
1200	5.5	566	95.7
1300	5.5	566	95.2

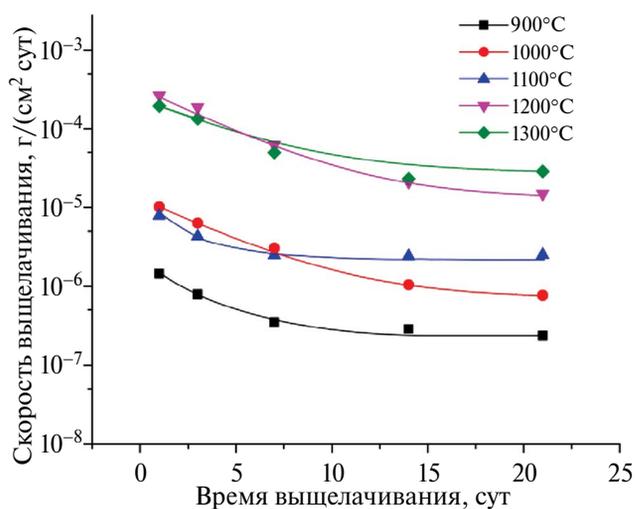


Рис. 5. Кривые скорости выщелачивания лантана из объема образцов керамики, полученных при различных температурах ИПС, в раствор дистиллированной воды в течение 30 сут.

Результаты определения химической устойчивости представлены на рис. 5. Согласно экспериментальным данным, наибольшей гидролитической стойкостью обладает образец, полученный при 900°C, так как скорость выщелачивания лантана составляет 10^{-7} г/(см² сут). Установлено, что с повышением температуры спекания химическая устойчивость образцов падает до значений 10^{-5} г/(см² сут). Такая корреляция объясняется изменением фазового состава образцов с повышением температуры, это свидетельствует о том, что наибольший вклад в гидролитическую стойкость образцов вносит химическое связывание лантана в структуре, несмотря на морфологические особенности.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом цитратного золь-гель синтеза получен наноразмерный порошок кристаллического $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ с размером зерна не более 0.2 мкм. Исследован способ консолидации наноразмерного $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ по технологии ИПС с получением образцов высокоплотной керамики. Методами РФА и РЭМ изучен фазовый состав и структура образцов керамики, полученных в интервале температур 900–1300°C. Установлено, что фазовый состав керамики претерпевает изменения с ростом температуры. При повышении температуры >1200°C происходит частичная трансформация моноклинной структуры $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ в орторомбическую, а также формируется фаза LaTiO_3 . При этом выявлено изменение структуры керамики, сопровождаемое формированием непористых и бездефектных монолитных образцов. Подобное изменение приводит к повышению относительной плотности (81.3–95.7%) и прочности при сжатии (78–566 МПа) образцов керамики, однако характеризуется снижением гидролитической стойкости керамики, на что указывает увеличение скорости выщелачивания La^{3+} с 10^{-7} до 10^{-5} г/(см² сут).

Полученные результаты полезны для системного исследования материалов, пригодных для технологий иммобилизации радиоактивных отходов в керамику. Результаты однозначно указывают, что золь-гель синтез может представлять целесообразность для предварительной подготовки радиоактивной шихты, которая за счет высокой дисперсности подвергается эффективному спеканию в одну стадию при относительно низких температурах с достижением высокого эксплуатационного качества керамики.

ФИНАНСИРОВАНИЕ РАБОТЫ

Исследование выполнено в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (тема FZNS-2023-0003).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Orlova A.I., Ojovan M.I. // *Materials (Basel)*. 2019. V. 12. № 16. P. 2638. <https://doi.org/10.3390/ma12162638>
2. Wang Z., Zhou G., Jiang D. et al. // *J. Adv. Ceram.* 2018. V. 7. № 4. P. 289. <https://doi.org/10.1007/s40145-018-0287-z>
3. Subramanian M.A., Aravamudan G., Subba Rao G.V. // *Prog. Solid State Chem.* 1983. V. 15. № 2. P. 55. [https://doi.org/10.1016/0079-6786\(83\)90001-8](https://doi.org/10.1016/0079-6786(83)90001-8)
4. Shrivastava O.P., Kumar N., Sharma I.B. // *Bull. Mater. Sci.* 2004. V. 27. № 2. P. 121. <https://doi.org/10.1007/BF02708493>
5. Wang J., Ghosh D.B., Zhang Z. // *Materials (Basel)*. 2023. V. 16. № 14. P. 4985. <https://doi.org/10.3390/ma16144985>
6. Papynov E.K., Belov A.A., Shichalin O.O. et al. // *Russ. J. Inorg. Chem.* 2021. V. 66. № 5. P. 645. <https://doi.org/10.1134/S0036023621050132>
7. Ewing R.C., Weber W.J., Lian J. // *J. Appl. Phys.* 2004. V. 95. № 11. P. 5949. <https://doi.org/10.1063/1.1707213>
8. Lutique S., Staicu D., Konings R.J.M. et al. // *J. Nucl. Mater.* 2003. V. 319. P. 59. [https://doi.org/10.1016/S0022-3115\(03\)00134-X](https://doi.org/10.1016/S0022-3115(03)00134-X)
9. Xue J., Zhang K., He Z. et al. // *Materials (Basel)*. 2019. V. 12. № 7. P. 1163. <https://doi.org/10.3390/ma12071163>
10. Patwe S.J., Tyagi A.K. // *Ceram. Int.* 2006. V. 32. № 5. P. 545. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2005.04.009>
11. Panghal A., Kumar Y., Singh F. et al. // *Ceram. Int.* 2023. V. 49. № 8. P. 12191. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2022.12.071>
12. Mandal B.P., Pandey M., Tyagi A.K. // *J. Nucl. Mater.* 2010. V. 406. № 2. P. 238. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2010.08.042>
13. Liu K., Zhang K., Deng T. et al. // *Ceram. Int.* 2021. V. 47. № 10. P. 13363. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2021.01.193>
14. Liu K., Zhang K., Deng T. et al. // *Ceram. Int.* 2020. V. 46. № 10. P. 16987. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.03.283>
15. Fan L., Shu X., Lu X. et al. // *Ceram. Int.* 2015. V. 41. № 9. P. 11741. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2015.05.140>
16. Fan L., Shu X., Ding Y. et al. // *J. Nucl. Mater.* 2015. V. 456. P. 467. <https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2014.10.025>
17. Danks A.E., Hall S.R., Schnepf Z. // *Mater. Horizons*. 2016. V. 3. № 2. P. 91. <https://doi.org/10.1039/c5mh00260e>
18. Belov A.A., Shichalin O.O., Papynov E.K. et al. // *J. Compos. Sci.* 2023. V. 7. № 10. P. 421. <https://doi.org/10.3390/jcs7100421>

SYNTHESIS OF $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ NANOSCALE POWDER AND CERAMICS BASED ON IT BY SOL-GEL AND SPARK PLASMA SINTERING

O. O. Shichalin^{a, *}, E. K. Papynov^a, A. A. Belov^a, K. A. Pervakov^a,
S. S. Griбанова^a, S. M. Pisarev^a, A. N. Fedorets^a, A. V. Pogodaev^a, A. O. Lembikov^a,
Y. G. Zernov^a, P. A. Marmaza^a, O. V. Kapustina^a, E. A. Gridasova^a, I. Yu. Buravlev^a

^aFar Eastern Federal University, p. Ajax, 10, Russky Island, Vladivostok, 690922 Russian

*e-mail: oleg_shich@mail.ru

The application of ceramics as matrices for the immobilization of radionuclides for the purpose of their safe long-term disposal or beneficial use is being studied with an emphasis on phase stability, structural integrity, hydrolytic stability, etc. In this work, a combined approach was investigated, based on the sol-gel citrate synthesis of nanosized $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ powder and its subsequent spark plasma sintering to produce dense ceramics. The phase composition and structure of the nanosized $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ powder and ceramic samples based on it, obtained in the temperature range of 900–1300 °C, were studied by XRD and SEM. It has been shown that the powder synthesis conditions ensure the formation of nanosized crystalline $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ grains, whose consolidation under spark plasma heating conditions proceeds with a change in the phase composition from single-phase $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ of monoclinic structure to orthorhombic with an admixture of LaTiO_3 at temperatures above 1200 °C. It was revealed that the change in the ceramic structure is accompanied by the formation of non-porous and defect-free monolithic samples. It was determined that such a change leads to an increase in relative density (81.3–95.7%) and compressive strength (78–566 MPa) of the ceramic samples. However, the hydrolytic stability of the ceramics decreases, as indicated by an increase in the leaching rate of La^{3+} from 10^{-7} to 10^{-5} g/cm²·day. The obtained results are useful for the systematic study of materials suitable for immobilization technologies of radioactive waste in ceramics.

Keywords: ceramics, radionuclides, radioactive waste management, sol-gel synthesis, SPS