

ФИЗИКО-ХИМИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ
НЕОРГАНИЧЕСКИХ СИСТЕМ

УДК 546.65.78+548.31

ДИАГРАММЫ ОБЛАСТЕЙ СУЩЕСТВОВАНИЯ СТРУКТУРНЫХ ТИПОВ
СОЕДИНЕНИЙ $MR(WO_4)_2$ ($M = NH_4, Cu, Ag, Ti$;
 $R =$ ТРЕХВАЛЕНТНЫЙ МЕТАЛЛ)

© 2004 г. П. В. Клевцов*, А. П. Перепелица**

*Институт неорганической химии СО РАН, Новосибирск

**Национальный университет пищевых технологий, Киев, Украина

Поступила в редакцию 12.03.2003 г.

Выполнено дополнительное экспериментальное исследование и обобщены сведения о 72 соединениях $MR(WO_4)_2$, где M – аммоний, медь(I), серебро(I), таллий(I), $R(III) = La-Lu, Y, Sc; In$ и Bi (с $Cu(I), Ag(I), Tl(I)$); Ga и Cr (с $Cu(I)$), полученных разными способами и изученных физико-химическими методами. Построены уточненные диаграммы областей существования структурных типов, обсуждено применение этих соединений.

Двойные вольфраматы щелочных и трехвалентных металлов известны как лазерные материалы [1, 2]. Аналогичные соединения с серебром(I), таллием(I) описаны в [3–7], с медью(I) – в [8–11], с аммонием – в [12]. Однако обобщенные диаграммы существования структурных типов этих соединений не построены, а данные об их практическом использовании не обнаружены.

Цель настоящего исследования – проведение дополнительного эксперимента и восполнение отмеченного пробела, так как такие диаграммы используются в качестве базы для создания неорганических материалов.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

В настоящей работе получены соединения общей формулы $MR(WO_4)_2 \cdot nH_2O$, $MIn(WO_4)_2$, $MBi(WO_4)_2$, где $M(I) = Ag, Ti$; $R = La-Lu, Y, Sc$; а также $CuR(WO_4)_2$, где $R(III) = La-Lu, Y, In, Sc, Ga, Cr, Bi$.

Соединения $MR(WO_4)_2 \cdot nH_2O$, где $M(I) = Ag, Ti$, $R(III) = La-Lu, Y, Sc$, синтезированы согласно [3] при естественных значениях pH растворов нитратов одно- и трехвалентного металлов и вольфрамата натрия и их концентрации 0.15–0.20 моль/л. Выпавшие осадки соединений отфильтровывали и высушивали. Аналогичные соединения с индием(III), висмутом(III) и скандием(III) получены твердофазным методом [7]. $CuR(WO_4)_2$ синтезированы спеканием стехиометрических количеств оксидов меди(I), металла(III) и вольфрама(VI) в атмосфере аргона или вакууме при температуре 600–700°C в течение 20–50 ч, в случае синтеза соединений, содержащих $Ce(III), Pr(III)$ и $Tb(III)$ в качестве исходных соединений, вместо R_2O_3 брали $R_2(WO_4)_3$ [8, 10]. Использованные для синтеза ре-

активы имели квалификацию “х. ч.” и “ч. д. а.”, в редких случаях – “ч.”, а для приготовления люминофоров – “ос. ч.”.

Химическую индивидуальность обезвоженных и затем прокаленных соединений определяли методом рентгенофазового анализа (РФА) (медное излучение, установка ДРОН-УМ 1), точность определения параметров $\pm(0.005-0.02)$ Å, термические свойства соединений изучали на дериватографе системы Паулик, Паулик, Эрдей при скорости нагревания 10 град/мин (навески 0.1–0.5 г, тигли платиновые и корундовые, точность измерения температуры $\pm 10^\circ C$ для предварительных опытов и $\pm 5^\circ C$ для систематических определений). Интегральную термопару Pt/Pt-Rh калибровали по температурам плавления нафталина, гидрохинона, олова, свинца, бихромата калия, эвтектик хлорид калия–сульфат калия, хлорид натрия–сульфат натрия, хлорида калия, хлорида натрия, сульфата натрия, серебра, сульфата калия и силиката лития. Все реперные вещества имели высокую чистоту и температуры плавления, отвечающие стандартным значениям. Холодные спаи термопар находились при $0^\circ C$. Значения температур плавления и полиморфных превращений определяли по максимуму или минимуму термоэффектов. Измерения проводили не менее двух раз, воспроизводимость результатов была надежной, так как оптимальные условия синтеза соединений тщательно соблюдали во всех случаях.

Двойные вольфраматы $RZ(III)$, индия(III), скандия(III), галлия(III), хрома(III), висмута(III) и меди(I) получены согласно [8], при нагревании на воздухе они начинают окисляться при $\sim 200^\circ C$, а к $\sim 700^\circ C$ этот процесс полностью заканчивается. Увеличение температуры выше $\sim 700^\circ C$ вызывает обратный эффект – присоединенный кисло-

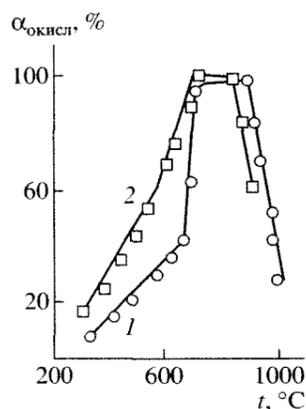


Рис. 1. Зависимость степени окисления (α , %) $\text{CuR}(\text{WO}_4)_2$ ($\text{R(III)} = \text{Eu}$ (1), Ho (2)) от температуры.

род начинает отщепляться (рис. 1), а при температуре $>900^\circ\text{C}$ этот процесс протекает довольно интенсивно. Соединения на воздухе термически неустойчивы и разлагаются в твердой фазе, этим можно объяснить первый излом на графике присоединения кислорода (рис. 1). Процесс разложения и окисления $\text{CuR}(\text{WO}_4)_2$ можно представить суммарным уравнением: $4\text{CuR}(\text{WO}_4)_2 + \text{O}_2 = 2\text{CuWO}_4 + 2\text{CuO} + 2\text{R}_2(\text{WO}_4)_3$, по которому рассчитывали теоретические значения прибавки массы при нагревании на воздухе.

Рентгенографически для $\text{CuR}(\text{WO}_4)_2$ ранее идентифицировано три структурных типа: тип $\alpha\text{-LiPr}(\text{WO}_4)_2$ для $\text{R(III)} = \text{La-Dy}$ (вещества кирпично-красного цвета), тип моноклинного вольфрамитоподобного $\beta\text{-LiYb}(\text{WO}_4)_2$ для $\text{R(III)} = \text{Ho-Lu, Y}$ (вещества черного цвета) [10] и структурный тип вольфрамитоподобного моноклинного $\text{LiFe}(\text{WO}_4)_2$ для $\text{R(III)} = \text{In, Sc, Ga, Cr}$ (вещества черного цвета) [13]. Кроме этих трех модификаций для соединений с $\text{R(III)} = \text{Nd, Dy, Er, Ho}$ кристаллизацией из раствора в расплаве в защитной атмосфере получена новая триклинная модификация красного цвета [11, 14, 15]. Структура $\text{CuBi}(\text{WO}_4)_2$ не установлена.

Двойные вольфраматы РЗЭ(III), индия(III), скандия(III) и серебра(I) получены из водных растворов и твердофазным методом, а соединения с висмутом(III) – только твердофазным методом, спеканием стехиометрической смеси исходных средних вольфрамовых первоначально при 600°C в течение 25 ч и затем при 670°C в течение 50 ч. Выделенные из растворов и высушенные на воздухе соединения содержали до 5 молей воды, кроме соединения со скандием(III), где это количество равнялось четырем. При нагревании до 200°C соединения теряют воду и при $\sim 460^\circ\text{C}$ начинают переходить из рентгеноаморфного в кристаллическое состояние. Плавятся все $\text{AgR}(\text{WO}_4)_2$ ($\text{R(III)} = \text{PЗЭ}$)

при $980\text{--}1175$ [16], $\text{AgIn}(\text{WO}_4)_2$ – при 930 , $\text{AgSc}(\text{WO}_4)_2$ – при 695 [17], $\text{AgBi}(\text{WO}_4)_2$ – при 780°C [16].

Низкотемпературные модификации $\text{AgR}(\text{WO}_4)_2$ ($\text{R(III)} = \text{La-Lu, Y, Sc}$) получены обезвоживанием этих веществ, осажденных из водных растворов, при 500°C в течение 25 ч.

С помощью РФА установлено, что все соединения, кроме соединений с $\text{R(III)} = \text{La, Bi}$, являются полиморфными. Для соединения с лантаном(III) и Bi(III) обнаружен только один структурный тип шеллита, который является высокотемпературной модификацией у соединений с $\text{R(III)} = \text{Ce-Lu, Y}$, низкотемпературные модификации соединений с этими РЗЭ принадлежат к структурному типу $\alpha\text{-KNd}(\text{WO}_4)_2$. Температура фазового $\alpha \rightarrow \beta$ полиморфного превращения закономерно возрастает от $\sim 700^\circ\text{C}$ у соединения с церием(III) до 1050°C у соединения с эрбием(III). Охлаждение высокотемпературных $\beta\text{-AgR}(\text{WO}_4)_2$, где $\text{R(III)} = \text{Ce-Ho, Y}$, приводит к образованию β' -модификации со структурой искаженного шеллита [16]. Для $\text{AgIn}(\text{WO}_4)_2$ обнаружено полиморфное превращение при 890°C , а для $\text{AgSc}(\text{WO}_4)_2$ – при 660°C [17]. Низкотемпературные α -модификации обоих соединений имеют вольфрамитоподобную структуру типа $\text{NaFe}(\text{WO}_4)_2$ [18], что не противоречит [19].

Двойные вольфраматы трехзарядных металлов и таллия(I), полученные осаждением из водных растворов (кроме соединения с Bi(III)) в виде гидратированных осадков $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, обезвоживаются при нагревании до 180°C . Кристаллизация безводных соединений происходит при $430\text{--}480^\circ\text{C}$, а фазовый переход (экзоэффект на кривых ДТА): при 530 (для соединения с празеодимом(III)) и 745°C (для соединения с иттербием(III)). Плавятся $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2$ в интервале $915\text{--}1015^\circ\text{C}$: при 940 – с La(III) , 920 – с Ce(III) , 1015 – с Gd(III) , 930 – с Lu(III) [20], 915 – с In(III) , 940 – с Sc(III) [17].

Для $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2$ методами РФА и ИК-спектроскопии идентифицированы структурные типы: $\alpha\text{-KNd}(\text{WO}_4)_2$ для α -модификации соединения с лантаном(III), все α -модификации $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2$ ($\text{R(III)} = \text{Ce-Lu, Y}$) и $\text{TlBi}(\text{WO}_4)_2$ представлены одним структурным типом – $\alpha\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$; $\beta\text{-TlNd}(\text{WO}_4)_2$ имеет структуру $\text{KY}(\text{WO}_4)_2$; структурный тип $\beta'\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$ найден для всех β' -модификаций соединений с $\text{R(III)} = \text{Eu-Lu, Y}$ [20, 21]. Структура $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2$ ($\text{R(III)} = \text{In, Sc}$) не изучена, но по данным РФА для них установлен структурный тип гексагонального $\text{KSc}(\text{WO}_4)_2$.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Как видно из рис. 2, среди соединений с NH_4 [12], Cu(I) , Ag(I) и Tl(I) структурный тип искаженного

шеелита встречается в аммониевых и серебряных соединениях, а также в таллий-лантановом двойном вольфрамите. В структуре шеелита кристаллизуются $\beta\text{-AgR}(\text{WO}_4)_2$ ($R(\text{III}) = \text{Ce-Lu, Y}$) и $\beta\text{-TlLa}(\text{WO}_4)_2$. К структурному типу гексагонального $\text{KSc}(\text{WO}_4)_2$ принадлежат $\text{NH}_4\text{Sc}(\text{WO}_4)_2$ и $\text{TlR}(\text{WO}_4)_2$ ($R(\text{III}) = \text{In, Sc}$); структурный тип $\alpha\text{-KNd}(\text{WO}_4)_2$ обнаружен для α -модификаций $\text{AgR}(\text{WO}_4)_2$ ($R(\text{III}) = \text{Ce-Lu, Y}$), $\alpha\text{-TlLa}(\text{WO}_4)_2$ и $\beta\text{-TlR}(\text{WO}_4)_2$ ($R = \text{Ce, Pr}$). Другие структурные типы существуют только в рядах соединений с одним и тем же однозарядным катионом: тип $\beta\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$ – в соединениях с аммонием; типы $\alpha\text{-LiPr}(\text{WO}_4)_2$, $\beta\text{-CuNd}(\text{WO}_4)_2$, $\beta\text{-LiYb}(\text{WO}_4)_2$ и $\text{LiFe}(\text{WO}_4)_2$ – в соединениях с медью; тип $\text{NaFe}(\text{WO}_4)_2$ – в соединениях с серебром при $R(\text{III}) = \text{In, Sc}$; тип $\alpha\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$ – в низкотемпературных модификациях соединений с таллием при $R(\text{III}) = \text{Ce-La, Y}$. Кроме этих ранее известных типов структур для $\beta\text{-TlSm}(\text{WO}_4)_2$ и $\beta\text{'-TlNd}(\text{WO}_4)_2$ обнаружены новые структурные типы [20, 21].

Некоторые структурные типы, обнаруженные в $\text{MR}(\text{WO}_4)_2$ (см. таблицу), ранее были идентифицированы в аналогичных по составу двойных молибдатах: тип $\text{NaFe}(\text{WO}_4)_2$ (он же $\text{NaIn}(\text{WO}_4)_2$) – для $\text{CuR}(\text{WO}_4)_2$, $R(\text{III}) = \text{Tm-Lu}$ и $\alpha\text{-AgFe}(\text{WO}_4)_2$; тип $\text{LiFe}(\text{WO}_4)_2$ – в $\text{CuIn}(\text{WO}_4)_2$; тип CaWO_4 – в $\text{AgLa}(\text{WO}_4)_2$ и $\beta\text{-AgR}(\text{WO}_4)_2$, $R = \text{Ce-Lu, Y, Bi}$; тип $\text{KY}(\text{WO}_4)_2$ в $\alpha\text{-TlR}(\text{WO}_4)_2$ при $R(\text{III}) = \text{Ce-Tb}$ и для $\text{NH}_4\text{La}(\text{WO}_4)_2$ [22–24], а также несколько других.

Наличие общих структурных типов у двойных молибдатов и вольфраматов аммония, меди(I), серебра(I), таллия(I) и металлов(III) объясняется довольно близкими значениями радиусов молибдена и вольфрама (по Шеннону и Превитту для $\text{Mo}^{6+} - 0.42 \text{ \AA}$, а для $\text{W}^{6+} - 0.41 \text{ \AA}$). В этом случае большая поляризуемость W^{6+} по сравнению с Mo^{6+} имеет меньшее влияние на формирование типа структуры, чем размерный фактор. Когда двойные молибдаты и вольфраматы с одними и теми же одно- и трехзарядными катионами имеют разные структуры, то это происходит под влиянием поляризационного воздействия иона W^{6+} .

Опытным путем установлено, что двойные вольфраматы аммония и металлов(III) подобно аналогичным молибдатам при выделении из водных растворов осаждаются на поверхность $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$, глины и волокнистых алюмосиликатов. После фильтрования, приготовления из сырого осадка экструдатов продавливанием осадочной массы через решетку с диаметром отверстий ~4 мм, высушивания и прокаливания при 450–550°C в течение 6–8 ч из этой массы получают каталитически активный материал в реакциях крекинга и гидрокрекинга высококипящих фракций нефти. В технологии изготовления этих материа-

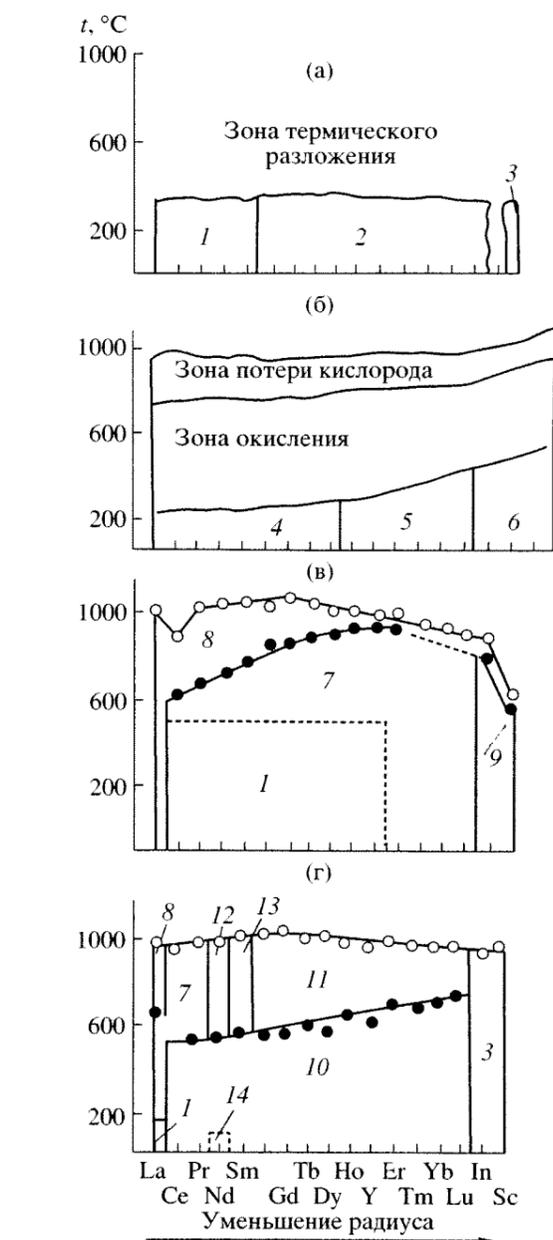


Рис. 2. Диаграммы областей существования структурных типов $\text{MR}(\text{WO}_4)_2$, $M(\text{I}) - \text{NH}_4$ (а) [12]; Cu (б), Ag (в) и Tl (г). 1 – тип моноклин.-иск. CaWO_4 , 2 – $\beta\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$, 3 – $\text{KSc}(\text{WO}_4)_2$, 4 – $\alpha\text{-LiPr}(\text{WO}_4)_2$, 5 – $\beta\text{-LiYb}(\text{WO}_4)_2$, 6 – $\text{LiFe}(\text{WO}_4)_2$, 7 – $\alpha\text{-KNd}(\text{WO}_4)_2$, 8 – CaWO_4 , 9 – $\text{NaFe}(\text{WO}_4)_2$, 10 – $\alpha\text{-KY}(\text{WO}_4)_2$, 11 – $\beta\text{'-KY}(\text{WO}_4)_2$, 12 – $\text{KY}(\text{WO}_4)_2$, 13 и 14 – новые структурные типы, образующиеся при охлаждении расплава [16].

лов экономически более целесообразно вместо индивидуальных РЗЭ применять их смесь, например, смесь растворимых солей, полученных из оксидов цериевого концентрата.

Рентгенографические характеристики представителей структурных типов $MR(WO_4)_2$ ($M(I) = Ag, Tl$; $R(III) = La, Y, In, Sc, Bi$)

Модификация и формула соединения	Структурный тип и вероятная пр. гр.	Параметры элементарной ячейки				Z	ρ , г/см	Литература
		a, Å	b, Å	c, Å	угол искажения			
α -CuNd(WO ₄) ₂	α -LiPr(WO ₄) ₂ , C_1^1 -P1	7.46	7.99	7.20	$\alpha = 115^\circ 00'$ $\beta = 116^\circ 09'$ $\gamma = 56^\circ 51'$	2	7.24	[10]
β -CuNd(WO ₄) ₂	Новый, P1	6.133	6.076	5.019	$\alpha = 111^\circ 59'$ $\beta = 93.24^\circ$ $\gamma = 111^\circ 2'$	1	–	[11]
α -CuY(WO ₄) ₂	β -LiYb(WO ₄) ₂ , C_{2h}^4 -P2/n	10.06	5.81	5.02	$\beta = 94^\circ 10'$	2	7.39	[10]
β -CuY(WO ₄) ₂	β -CuY(WO ₄) ₂ , P1	5.939	6.042	5.025	$\alpha = 112.3^\circ$ $\beta = 92.84^\circ$ $\gamma = 111.77^\circ$	1	–	[14]
CuIn(WO ₄) ₂	LiFe(WO ₄) ₂ , C2/c	9.67	11.65	4.989	$\beta = 90.9^\circ$	4	9.51	[13]
α -AgNd(WO ₄) ₂	α -KNd(WO ₄) ₂ , 12/c	8.08	10.85	7.29	$\beta = 98.2^\circ$	–	7.78	[16]
β -AgNd(WO ₄) ₂	CaWO ₄ , I4 ₁ /a	5.321		11.58		2	7.60	[16]
β' -AgSm(WO ₄) ₂	–	5.294	11.55	5.278	$\beta = 90.2^\circ$	2	7.885	[16]
AgIn(WO ₄) ₂	NaIn(WO ₄) ₂ , P2/c	10.44	5.87	5.07	$\beta = 90(1)^\circ$	2	7.68	[18]
α -TlLa(WO ₄) ₂	α -KNd(WO ₄) ₂ , 12/c	8.45	10.99	7.64	$\beta = 100^\circ 27'$	4	8.04	[20]
β -TlLa(WO ₄) ₂	CaWO ₄ , I4 ₁ /d	5.46		12.29		2	7.63	[20]
α -TlNd(WO ₄) ₂	α -KY(WO ₄) ₂ , 12/c	8.24	10.65	7.64	$\beta = 94^\circ 14'$	4	8.41	[20]
β -TlY(WO ₄) ₂	β' -KY(WO ₄) ₂ , P2/c	17.89	10.35	7.78	$\beta = 94^\circ 47'$	8	7.33	[20]
TlBi(WO ₄) ₂	α -KY(WO ₄) ₂ , 12/c	8.25	10.61	7.61	$\beta = 93.8^\circ$	4	9.11	[21]

Каталитическую активность $CuR(WO_4)_2$ проверяли на примере соединения $CuBi(WO_4)_2$. Установлено, что соединение имеет в реакции окисления гидроксида лития на ~30% более высокую каталитическую активность, чем известный компонент катализаторов – средний вольфрамат висмута.

В реакции гидрокрекинга, проводимого с керосином при 520–550°C согласно методике [22], использование двойного вольфрамата меди(I) и висмута(III) приводило к уменьшению образования газообразных продуктов и увеличению выхода жидкого ароматизированного конденсата.

Соединения $CuR(WO_4)_2$, обладая свойством обратимо присоединять кислород в зависимости от температуры, перспективны как катализаторы процессов, связанных с транспортом кислорода – горения, окисления; они, как и $CuR(MoO_4)_2$, могут быть действующими компонентами катализаторов анодов топливных элементов и, возможно, катализаторов дожигания выхлопов от жидкого топлива двигателей внутреннего сгорания. $CuR(WO_4)_2$ при $R(III) = La-Tb$ – диэлектрики, а при $R(III) = Ho-Lu, Y, In, Sc, Ga, Cr$ – полупроводники.

$MR(WO_4)_2$ ($M(I) = Ag, Tl$, $R(III) = La, Y$) – основа, а при $R(III) = Eu, Dy, Er$ – активаторы цветных люминофоров, яркость которых, особенно β -TlEu(WO₄)₂ с наиболее интенсивной линией в спектре люминесценции при 612.5 нм, выше, чем яркость аналогичных по составу двойных молибдатов [23, 24].

Таким образом, выполнено дополнительное исследование и обобщены сведения о двойных вольфраматах аммония, меди(I), серебра(I), таллия(I) и трехвалентных металлов; построены уточненные диаграммы областей существования структурных типов и названы возможные области применения этих соединений.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Евдокимов А.А., Ефремов В.А., Трунов В.К. и др. Химия редкоземельных элементов. Молибдаты, вольфраматы. М.: Наука, 1991. 267 с.
2. Мохосоев М.В., Базарова Ж.Г. Сложные оксиды молибдена и вольфрама с элементами I–IV групп. М.: Наука, 1990. 255 с.
3. Максим В.И. Дис. ... канд. хим. наук. Киев, 1975. 191 с.

4. Голуб А.М., Максин В.И., Капишук А.А., Кириллов С.А. // Журн. неорганической химии. 1976. Т. 21. № 9. С. 2384.
5. Максин В.И., Голуб А.М., Кириллов С.А. // Журн. неорганической химии. 1976. Т. 24. № 10. С. 2762.
6. Максин В.И., Голуб А.М. // Журн. неорганической химии. 1976. Т. 21. № 11. С. 2914.
7. Голуб А.М., Максин В.И. // Журн. неорганической химии. 1977. Т. 22. № 2. С. 566.
8. Голуб А.М., Синкевич А.В., Перепелица А.П., Максин В.И. // Тез. докл. III Всесоюз. совещ. по химии и технологии молибдена и вольфрама. Орджоникидзе, 1977. С. 204.
9. Арзуманян Г.А. Автореф. дис. ... канд. хим. наук. М., 1979.
10. Клевцов П.В., Перепелица А.П., Синкевич А.В. // Кристаллография. 1980. Т. 25. № 3. С. 624.
11. Mutt H.-C., Muller-Buschbaum Hk. // Z. Anorg. Allg. Chem. 1988. V. 566. № 11. P. 25.
12. Максин В.И., Голуб А.М., Капишук А.А. // Журн. неорганической химии. 1977. Т. 22. № 1. С. 105.
13. Клевцов П.В., Перепелица А.П. // Журн. неорганической химии. 1981. Т. 26. № 8. С. 2251.
14. Muller-Buschbaum Hk., Kruger T.F. // Z. Anorg. Allg. Chem. 1992. V. 615. № 9. P. 52-56.
15. Muller-Buschbaum Kh., Kruger T.F. // Z. Anorg. Allg. Chem. 1993. V. 202. № 1-2. P. 63.
16. Клевцов П.В., Максин В.И., Клевцова Р.Ф., Голуб А.М. // Кристаллография. 1976. Т. 21. № 4. С. 759.
17. Сорокина О.В., Карпов В.Н., Джурицкий Б.Ф., Пашикова А.В. // Изв. АН СССР. Неорганические материалы. 1976. Т. 12. № 12. С. 2202.
18. Пахомов В.И., Федорова П.М., Окунева А.С., Сорокина О.В. // Коорд. химия. 1976. Т. 3. № 5. С. 765.
19. Перепелица А.П., Мохосоев М.В. // Журн. неорганической химии. 1980. Т. 25. № 10. С. 2848.
20. Клевцов П.В., Перепелица А.П., Максин В.И. // Журн. неорганической химии. 1983. Т. 28. № 11. С. 2789.
21. Клевцов П.В., Перепелица А.П., Клевцова Р.Ф. // Журн. неорганической химии. 1983. Т. 28. № 3. С. 645.
22. Перепелица А.П. // Журн. прикладной химии. 1996. Т. 69. № 5. С. 852.
23. Перепелица А.П. // Журн. прикладной химии. 1996. Т. 69. № 5. С. 684.
24. Перепелица А.П. // Журн. прикладной химии. 1996. Т. 69. № 8. С. 1252.