

## Распределение примесей плутония между полиморфными модификациями редкоземельных фосфатов

Научный руководитель – Еремин Николай Николаевич

Михайлова П.С.<sup>1</sup>, Уланова А.С.<sup>2</sup>

1 - Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, Геологический факультет, Кафедра кристаллографии и кристаллохимии, Москва, Россия, *E-mail: mihaylova.pol@yandex.ru*; 2 - Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, Геологический факультет, Кафедра кристаллографии и кристаллохимии, Москва, Россия, *E-mail: kara-2796@mail.ru*

Ортофосфаты редкоземельных элементов являются потенциальными материалами для изготовления консервирующих матриц для утилизации высокоактивных радиоактивных отходов. На эту возможность указывают, в том числе, факты редкого нахождения этих природных соединений в метамиктном состоянии. Относительная сложность проведения физических экспериментов с твердыми растворами, содержащими радиоактивные элементы, указывает на необходимость использовать методы математического моделирования, в частности, полуэмпирического структурного моделирования с помощью атомистических потенциалов межатомного взаимодействия.

Этим методом с использованием собственного оригинального набора потенциалов межатомного взаимодействия в частично ионном приближении были произведены расчеты свойств смешения в бинарных твёрдых растворах различных полиморфных модификаций редкоземельных фосфатов со структурами типа монацита, ксенотима, рабдофана с примесью радиоактивного плутония.

Методом расчета в больших сверхъядерках была произведена оценка свободной энергии смешения в системах TbPO<sub>4</sub> - PuPO<sub>4</sub> и GdPO<sub>4</sub> - PuPO<sub>4</sub> для трёх различных структурных модификаций. Для расчётов была использована сверхъядерка размером 4×4×4, содержащая, в зависимости от структурного типа, от 256 до 384 изоморфных атомных позиций в катионной подрешетке (Рис. 1). Результаты расчетов представлены в таблице 1.

Зависимость свободной энергии смешения от температуры в данных системах, может быть представлена в хорошем приближении в качестве линейной функции. Поведенные расчеты позволили количественно оценить коэффициенты распределения плутония между изучаемыми кристаллическими структурами. Показано, что в фосфатах лёгких редких земель примесь плутония аккумулируется преимущественно в структуре рабдофана (пр. гр. *C2*), а в фосфатах тяжёлых редких земель более подходящей для иммобилизации радиоактивных актиноидов является структура монацита (пр. гр. *P2<sub>1</sub>/n*).

### Источники и литература

- 1) Еремин Н.Н., Марченко Е.И., Михайлова П.С., Уланова А.С. Теоретическая оценка энергетики вхождения примеси плутония в фосфаты со структурой монацита, ксенотима и рабдофана. Проблемы кристаллологии, Выпуск 7, КДУ Москва, 2019, с. 16 - 29

### Иллюстрации

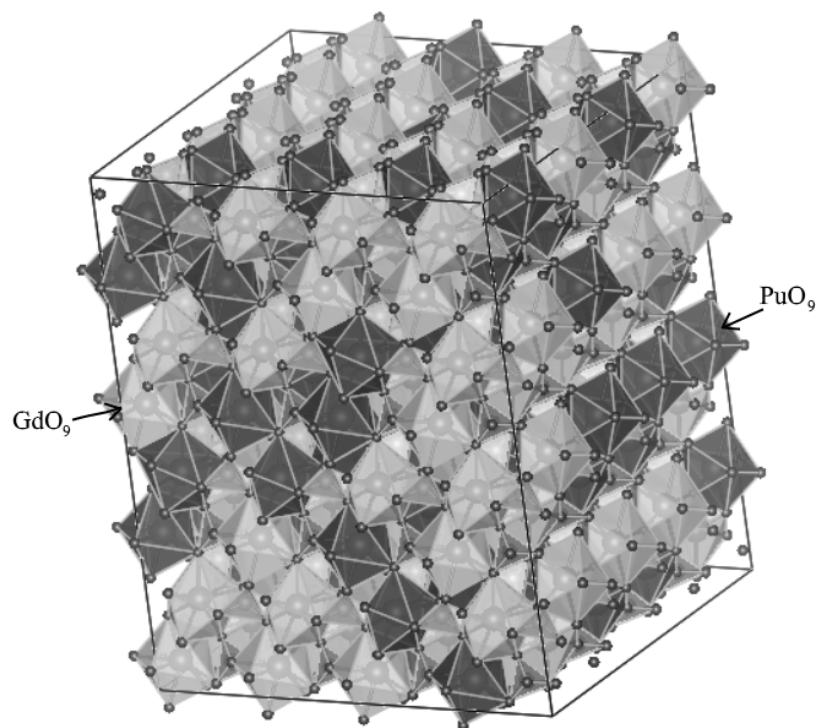


Рис. 1. Сверхъячейка монацита состава  $Gd_{128}Pu_{128}P_{128}O_{512}$

	Q1, КДж/моль	Q2, КДж/моль	$dH_{0.5}$ , КДж/моль	$dG_{0.5}(200)$ , КДж/моль	$dG_{0.5}(400)$ , КДж/моль	$dG_{0.5}(600)$ , КДж/моль
Система $GdPO_4$ - $PuPO_4$						
Монацит	4.16	4.38	1.050	-0.1430	-1.2693	-2.3952
Ксенотим	6.55	6.04	1.574	0.2205	-0.9647	-2.1466
Рабдофан	3.62	3.86	0.935	-0.3275	-1.4686	-2.6210
Система $TbPO_4$ - $PuPO_4$						
Монацит	10.42	10.08	2.563	1.2369	0.0887	-1.0761
Ксенотим	24.74	18.79	5.441	3.5770	2.2450	0.9290
Рабдофан	11.75	12.66	3.051	1.6436	0.4955	-0.6660

Рис. 2. Таблица 1. Параметры взаимодействия, энтальпия смешения и свободная энергия смешения в системах  $GdPO_4$ - $PuPO_4$  и  $TbPO_4$ - $PuPO_4$