

Сравнительная характеристика вхождения примеси плутония в безводные фосфаты лёгких и тяжёлых редкоземельных элементов различных полиморфных модификаций.

Научный руководитель – Еремин Николай Николаевич

Михайлова Полина Сергеевна

Студент (бакалавр)

Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, Геологический факультет, Кафедра кристаллографии и кристаллохимии, Москва, Россия

E-mail: mihaylova.pol@yandex.ru

Полиморфные модификации ортофосфатов редкоземельных элементов, монацит, ксенотим и рабдофан, в природе представляют собой сложные изоморфные смеси с существенной долей радиоактивных актиноидов, при этом редко переходят в метамиктное состояние, что позволило рассматривать данные соединения в качестве потенциальных материалов для изготовления матриц для утилизации высокоактивных отходов. В данном случае метод полуэмпирического структурного моделирования с использованием разработанного ранее набора межатомных потенциалов [1] послужил хорошей альтернативой сложным в своём проведении физическим экспериментам.

В рамках работы были произведены расчёты свойств смешения в бинарных твёрдых растворах $TbPO_4 - PuPO_4$, $GdPO_4 - PuPO_4$, $LaPO_4 - PuPO_4$ и $EuPO_4 - PuPO_4$ для трёх различных полиморфных модификаций в приближении бесконечного разбавления, а также методом больших сверхъячеек, размером $4 \times 4 \times 4$, содержащих в себе от 192 до 256 изоморфных атомных позиций в катионных подрешётках.

Методом сверхъячеек рассчитывалась энергия смешения в твёрдых растворах с содержанием плутония 5, 10 и 15% для определения оптимальной концентрации примеси, способствующей наибольшей устойчивости структуры. Результаты расчётов методом сверхъячеек хорошо коррелируются с проведенными ранее в работах [2-3] расчётами в пределе бесконечного разбавления. В качестве примера на рисунке 1 показана зависимость энтальпии смешения в системе $GdPO_4 - PuPO_4$ от содержания плутония. Линиями показаны значения, полученные методом бесконечного разбавления, а точками - методом сверхъячеек.

Таким образом, в ходе расчётов двумя независимыми теоретическими подходами было показано, что для фосфатов лёгких редкоземельных элементов примесь плутония при температурах от 200 до 600 К преимущественно аккумулируется в структуре рабдофана (пр. гр. $C2$), а для фосфатов тяжёлых редких земель более подходящей для иммобилизации радиоактивных актиноидов является структура монацита (пр. гр. $P2_1/n$).

Источники и литература

- 1) Еремин Н.Н., Уланова А.С., Марченко Е.И. Разработка модели межатомных потенциалов и атомистическое моделирование кристаллических структур монацитов лёгких редкоземельных элементов. Сборник тезисов докладов IX Всероссийской конференции "Минералы: строение, свойства, методы исследования", Екатеринбург, 2018, с. 188-190
- 2) 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

- 3) Михайлова П.С., Еремин Н.Н., Марченко Е.И. Теоретическая оценка радиационной устойчивости лантанового монацита, ксенотима и рабдофана, допированных плутонием. Материалы XI Всероссийской молодежной научной конференции "Минералы: строение, свойства, методы исследования", Екатеринбург, 2020, с. 187-189

Иллюстрации

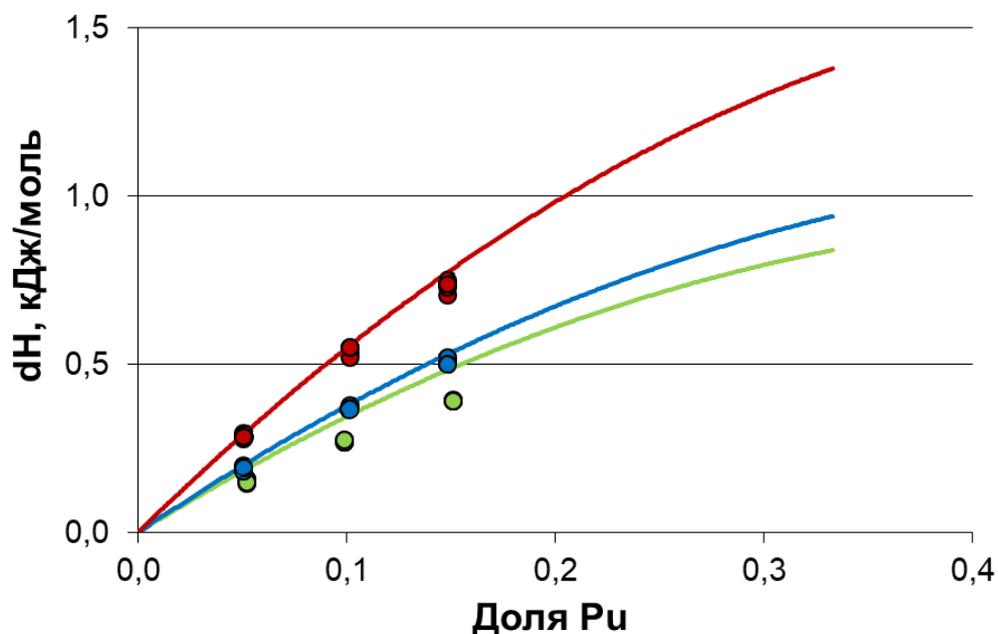


Рис. 1. Зависимость энтальпии смешения от содержания плутония в твёрдых растворах $GdPO_4 - PuPO_4$ со структурами монацита (синий), ксенотима (красный) и рабдофана (зелёный).