

ОЦЕНКА КОЭФФИЦИЕНТА ДИФФУЗИИ РАО В МИНЕРАЛЕ ИЛЛИТА

Ван Цайлунь

Научный руководитель: Мышкин В. Ф., д.ф.-м.н., профессор
Томский политехнический университет, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30
E-mail: caylun1224@gmail.com

Иллит - глинистый минерал, характеризующийся октаэдрическими центрами оксида алюминия, расположенными между двумя тетраэдрическими минеральными листами диоксида кремния и одной шестой частью ионов Si^{4+} , были заменены из тетраэдрических положений ионами Al^{3+} , приводят к отрицательно заряженным поверхностям. Помимо их физических свойств, таких как пластичность, поведение при набухании или низкая проницаемость, одной из наиболее важных характеристик глинистых минералов является их обычно сильная катионная адсорбция [1].

В докладе приводятся результаты моделирования по пяти возможным траекториям распространения катионов в сухом иллите. Очевидно, что возможна диффузия по широкому коридору вдоль направления выстраивания атомов Al. Максимальная величина барьера по «долине» потенциальной энергии 23539,6 эВ, а в перпендикулярном направлении - 23538,6 эВ при максимальной величине энергетической ямы 23541,8 эВ, минимальный барьер по «по долине» составляет 23541,5 эВ. Анализ кривых на рис. 1, b показывает, что вероятность скачка между двумя энергетическими ямами зависит от исходной координаты иона. Очевидно, что энергетическое состояние конечной точки прыжка не оказывает существенного влияния на вероятность перехода через энергетический барьер при диффузии.

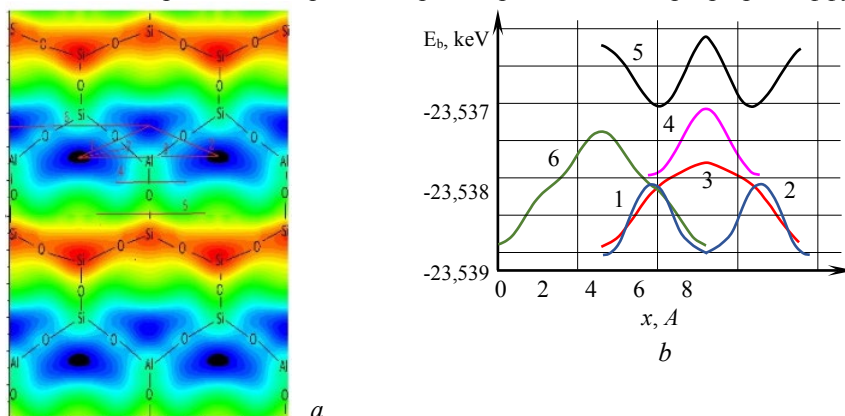


Рис. 1. Графики распределения энергии связи Li^+ с иллитом (a), по некоторым направлениям (b)

Рассчитаны коэффициенты диффузии ионов Li^+ между в межслоином пространстве иллита по заданным линиям, показанным на рис. 1, a. Эти данные приведены в таблице 1. Аналогичные данные для ионов более тяжелых щелочных элементов значительно меньше (в 10^{10} и более раз), чем для ионов Li^+ . Из величин коэффициентов диффузии ионов различных щелочных металлов следует следующее заключение – в сухом минерале иллита, не содержащем воду в межслоевом пространстве, невозможна диффузия Li^+ . В указанных условиях диффузия ионов других щелочных элементов затруднена.

Таблица 1. Коэффициенты диффузии Li^+ по различным направлениям в минерале иллите

траектория	1	2	3	4	5	6	7
$D, \text{m}^2/\text{c}$	$4,84 \cdot 10^{-18}$	$4,84 \cdot 10^{-18}$	$3,20 \cdot 10^{-25}$	$1,38 \cdot 10^{-22}$	$2,34 \cdot 10^{-24}$	$2,28 \cdot 10^{-33}$	$3,19 \cdot 10^{-25}$

Из таблицы 1 видно, что коэффициент диффузии Li^+ , при наличии в расчетной ячейке лишь одного иона вместо трех, по наиболее «эффективной» для диффузии траектории в сухом минерале иллите составляет $D = 4,84 \cdot 10^{-18} \text{ m}^2/\text{c}$. С учетом того, что коэффициенты внутренней диффузии по другим направлениям значительно меньше, эффективный коэффициент диффузии, определяемый прыжковым механизмом, значительно отличаются от данных экспериментальных исследований $10^{-12} \text{ m}^2/\text{c}$ [2]. Это указывает как на невозможность диффузии Li^+ в сухом иллите. Возможна миграция радионуклидов по внешней поверхности кристаллита глины, которая также представляется маловероятной. Однако, наличие воды в межслоином пространстве значительно облегчает процесс диффузии катионов. При отсутствии микрофильтрации также необходимо учитывать вероятность проникновения иона внутрь кристаллита, а также пористость глинистой массы.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Maria Marques Fernandes, Nóra Vér, Bart Baeyens, Predicting the uptake of Cs, Co, Ni, Eu, Th and U on argillaceous rocks using sorption models for illite, Applied Geochemistry 59 (2015) 189–199.
2. Melkior T., Yahiaoui S., Thoby D. at all. Diffusion coefficients of alkaline cations in Bure mudrock // Physics and Chemistry of the Earth– № 32. –2007 – P. 453–462.