

**ИЗУЧЕНИЕ СОЛЬВАТАЦИИ И МИКРОДИНАМИКИ
ИОНОВ La(III), Gd(III) И Lu(III) В РАСПЛАВЕ 80LiF-20CaF₂
МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНОЙ ДИНАМИКИ**

Х. Б. Кушков, Г. Ю. Чуйко, В. Ю. Бузько, А. А. Полушин**, 2013*

* Кабардино-Балкарский государственный университет им. Х.М. Бербекова,
Нальчик, Россия, hasbikushchov@yahoo.com

** Лаборатория молекулярного моделирования химических процессов
и соединений, РМЦ «Югтехинформ», Краснодар, Россия, tchuik@yandex.ru

Сольватационное состояние ионов лантаноидов в расплавленной фторидной эвтектике состава 80LiF-20CaF₂ практически не изучено, тем не менее эта система является перспективной средой для электропирохимического репроцессинга облученного ядерного топлива.

Нами был применен метод молекулярно-динамического моделирования для изучения сольватации ионов La(III), Gd(III) и Lu(III) в модельном расплаве 80LiF-20CaF₂ в диапазоне температур 1100–1600 К. Молекулярно-динамические расчеты проводились в каноническом NVT-приближении с потенциалами MM+ в кубическом боксе с периодическими условиями для кластера 80LiF+20CaF₂ в центре которого размещался комплекс состава [LnF₆]³⁻. Траектории изучаемой системы с шагом интегрирования уравнений движения 1 фс собирались на протяжении 50 пс со временем температурной релаксации 2 фс с использованием программы HyperChem 7.5. Расчет координационного числа (КЧ) ионов Ln(III) в ходе МД-симуляций производился путем анализа 4×10⁴ динамических конфигураций для диапазона 10–50 пс, где система практически приходила к равновесному состоянию, по стандартной методике интегрирования функции радиального распределения. Таким образом, моделировались условия сольватации иона Ln(III) при соответствующей концентрации в пересчете на соединение LnF₃ 6,5–7,6 % (масс.) в расплаве 80LiF-20CaF₂.

Рассчитанная температурная зависимость средневзвешенного координационного числа ионов лантаноидов в расплаве 80LiF-20CaF₂ (рис. 1, а) свидетельствует о меньших КЧ ионов Gd(III) и Lu(III) по сравнению с ионом La(III) и о закономерном уменьшении КЧ с ростом температуры. Температурные зависимости рассчитанных величин коэффициентов диффузии изученных ионов лантаноидов (рис. 1, б) показывают закономерное возрастание коэффициентов диффузии с ростом температуры, причем для фторокомплексов ионов Gd(III) и Lu(III) характерна более выраженная тенденция к росту коэффициентов диффузии.

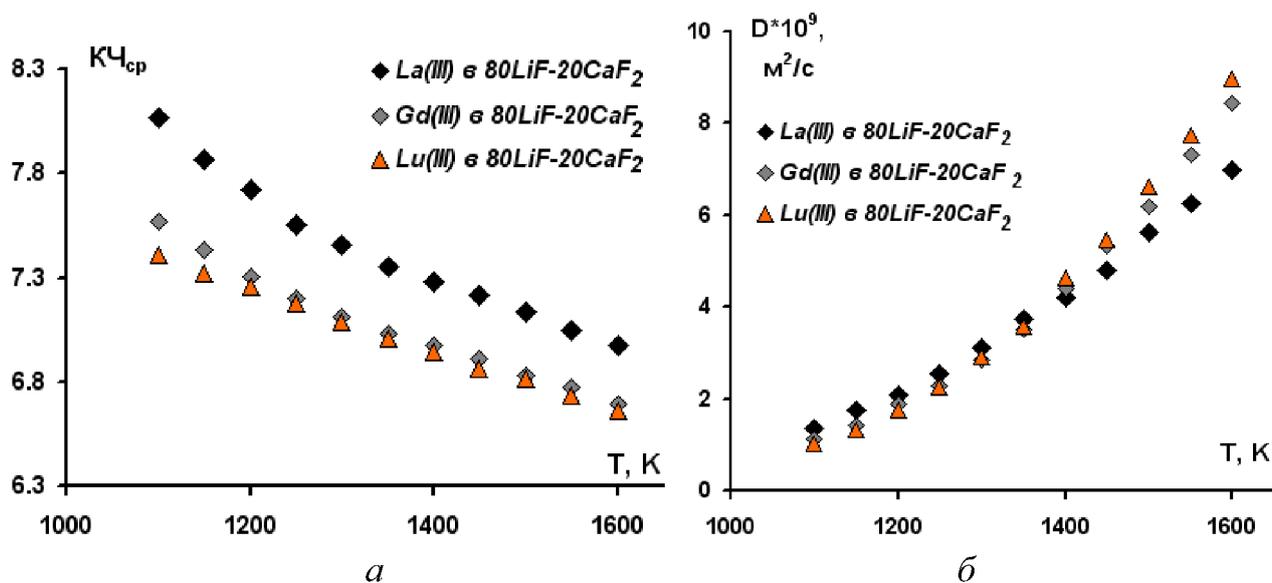


Рис. 1. *a* – рассчитанная температурная зависимость средневзвешенного координационного числа ионов лантаноидов; *б* – температурная зависимость рассчитанных коэффициентов диффузии ионов Ln(III) в модельном расплаве 80LiF-20CaF₂

Рассчитанные нами величины энергии активации диффузии ионов лантаноидов в изученном фторидном модельном расплаве (табл. 1) показывают возрастание в ряду La-Lu, что хорошо согласуется с известными литературными данными.

Таблица 1

Рассчитанные величины энергии активации диффузии ионов лантаноидов в модельном расплаве 80LiF-20CaF₂

| Система | LaF ₃ – (80LiF-20CaF ₂) | GdF ₃ – (80LiF-20CaF ₂) | LuF ₃ – (80LiF-20CaF ₂) |
|--------------------------------|--|--|--|
| ΔE^\ddagger , кДж/моль | 44,5±0,3 | 55,2±0,4 | 59,9±0,4 |

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации в рамках ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009–2013 годы» (госконтракт № 16.740.11.0523.), «Исследование и разработки по приоритетным направлениям развития научно-технического комплекса России на 2007–2013 гг.» (госконтракт № 16.552.11.7074).