

УДК 548.75:548.535+621.10

ВЛИЯНИЕ γ -ОБЛУЧЕНИЯ НА СТРУКТУРНО-ФАЗОВОЕ СОСТОЯНИЕ ТУФОГЕННЫХ ПОРОД

Э.П. Шевякова, С.Ю. Саенко, Е.П. Березняк, Л.А. Саенко, Е.А. Борц

Национальный научный центр «Харьковский физико-технический институт», Украина, г. Харьков, 61108,
ул. Академическая, 1.

Поступила в редакцию 17 марта 2006 г.

Методами кристаллооптического (минералого-петрографического) анализа и ИК-спектроскопии исследовано влияние γ -облучения ($E=1,6$ МэВ) на структурно-фазовое состояние туфогенных пород, предполагаемых в качестве матриц для размещения радиоактивных отходов. С ростом поглощенной дозы γ -квантов ($D_{\max}=3 \cdot 10^8$ Гр) происходит снижение механической прочности туфов и нарастание признаков вторичной кристаллизации в полевошпатово-кварцевой основной массе (базисе). Степень радиационной повреждаемости в туфах ниже, чем в полнокристаллических гранитах, что вызвано отсутствием непосредственных контактов обломочных фаз.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА: γ -облучение, радиационные дефекты, природные туфы, кристаллооптика, ИК-спектроскопия.

С развитием ядерной энергетики возникает необходимость прогнозирования поведения в радиационных полях неорганических материалов различных классов, включая композиции, используемые в качестве матриц при иммобилизации и захоронении радиоактивных отходов (РАО) на территории Украины [1].

Воздействие радиации на оптические свойства неорганических веществ различных классов возможно моделировать с помощью облучения ускоренными частицами: электронами, протонами, γ – квантами на линейных ускорителях ННЦ НАН Украины [2-4]. В отличие от реакторного облучения, вызывающего каскады смещений и приводящего к разрушению материала, основным типом радиационных дефектов при таком облучении являются ионизация и возбуждение электронной подрешетки [5-7]. Смещение атомов в структуре вещества сопровождается нарушением геометрического расположения ионов в решетке кристаллических соединений и энергетическими изменениями, что приводит к изменению частот колебания силовых связей в электронной подсистеме и проявляется в изменении дырочных и электронных свойств [6-8]. Одновременно изменяется плотность вещества, нарушается стехиометрия соединений с ионами переменной валентности, происходит разупорядочение структуры и новообразования метастабильных, высокотемпературных фаз [9-11].

Экспериментальные результаты позволяют сопоставить степень радиационной повреждаемости при облучении электронами и γ -квантами с начальными стадиями нейтронного облучения. Возможно использовать облучение электронами (E до 2-5 МэВ, $D=10^{19}$ эл/см²) и γ -квантами (E до 1,6 МэВ, $D=3 \cdot 10^8$ Гр) при моделировании природной радиоактивности (авторадии) и воздействия РАО, размещаемых в природных геологических формациях [12]. Стабильность и устойчивость физико-химических свойств материалов при γ - и электронном облучении приведенных параметров может служить критерием при выборе матричных композиций [13].

Цель работы - поиск природных матричных композиций перспективных для иммобилизации и долговременного захоронения РАО.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Объектом исследования послужили образцы туфогенных пород риолит-дацитового состава в виде цилиндрических кернов (до 45 мм в диаметре), поднятых с глубины 0-22,5 м.

Минералого-петрографическое изучение состава и структуры туфов проводилось с помощью поляризационных микроскопов (для видимой области спектра МИН-8 и ПОЛАМ-211). Образцы готовились как в виде прозрачных шлифов (толщиной $\sim 0,03$ мм), так и в виде порошковидных препаратов с применением иммерсионных жидкостей (стандартного набора ИЖ-1 и высокопреломляющих иммерсионных сред на основе серы и сернистого мышьяка в трёхбромистом мышьяке). Точность измерения кристаллооптических констант составляла $\pm 0,003$ (при 20°C).

Инфракрасные спектры поглощения записывались с помощью инфракрасного спектрофотометра УР-20 (Цейсс, Йена) в диапазоне частот 400-4000 см⁻¹. Точность измерения составляла $\pm 2-7$ см⁻¹ в зависимости от длины волны. Для записи спектров использовались таблетки, спрессованные из смеси порошков исследуемого вещества, вводимого в количестве 1 % и бромистого калия, служившего матрицей. Размер частиц порошковидной массы не превышал 10 мкм.

Облучение образцов проводилось на ускорителе электронов КУТ конвертированными γ -квантами со средней энергией 1,6 МэВ. Поглощенная доза D изменялась от 10^6 до $3 \cdot 10^8$ Гр.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Туфы в исходном состоянии представляют собой неравномерно окрашенные пестроцветные пористые породы с характерным разнообразием структурных фрагментов и пятнисто-линзовидной текстурой. Микроскопически витрокластическая поликомпонентная полукристаллическая фельзитовая основная масса с показателем преломления $N_{o.m.}=1,528-1,530$ содержит до 40-60 об.% включений обломочных кристаллических зёрен полевых шпатов и кварца. Судя по составу основной массы и соотношению обломочных включений, туфы относятся к кислым вулканогенным образованиям риолит-дацитового состава. Микроструктура исходной туфогенной породы определяется как витрокластическая, отчасти эвтакситовая, с развитием фрагментов ориентированных пепловых частиц и включением линзовидных миндалинок, заполненных агрегатом перекристаллизованных зёрен полевых шпатов (альбита) и кварца (рис.1).

Под влиянием облучения γ -квантами в полуморфной основной массе появляются участки перекристаллизации с развитием новообразований полевого шпата (альбит-олигоклаза) размерами до 0,075-0,100 мм. С увеличением поглощенной дозы ($3 \cdot 10^8$ Гр) их число возрастает. Особенно заметные изменения происходят в миндалевидных участках среди исходных пепловых частиц, где получают развитие агрегаты новообразованных полевых шпатов и кварца мозаичного и столбчатого погасания. Прослеживается развитие системы ветвистых окаймляющих трещинных пор на границе обломочных зёрен кварца и полевых шпатов с основной массой (рис.2).

В ИК спектрах облученных туфогенных пород отмечается ряд изменений по сравнению со спектрами исходных образцов.

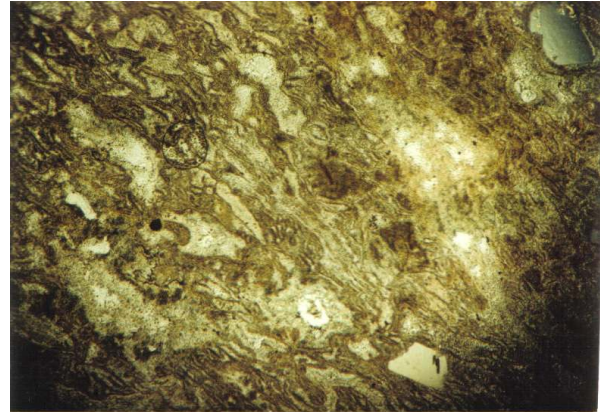
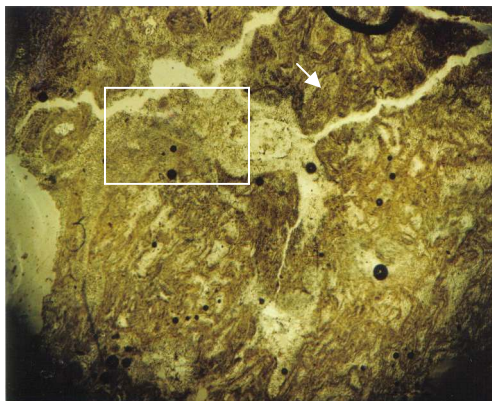


Рис.1. Микроструктура исходной туфогенной породы риолит-дацитового ряда (съемка без анализатора). Увеличение 100.



а



б

Рис.2. Микроструктура облученного γ -квантами ($D=3 \cdot 10^8$ Гр) туфа с включением пепловых частиц и миндалинок (в квадрате), заполненных новообразованным полевошпатово-кварцевым материалом. Увеличение 100.
а – съемка без анализатора. Стрелками показана система развивающихся механических трещин.
б – съемка в скрещенных поляриоидах. В миндалевидных включениях видны агрегаты вторичного кварца и альбита с мозаичным и веероидным погасанием.

Так, общее содержание адсорбированной воды уменьшается, а характер связи О-Н изменяется. Установлено появление полос поглощения, связанных с новообразованием полевошпатовой фазы в перекристаллизованной основной массе: 467-470, 525 и 590 см^{-1} . Уменьшаются по интенсивности полосы, относящиеся к обломочным включениям полевых шпатов, а полоса 550 см^{-1} , связанная с высокотемпературной моноклинной фазой $\text{K}(\text{Na})\text{AlSi}_3\text{O}_8$ (санидином) увеличивает интенсивность, что аналогично поведению щелочных полевых шпатов при облучении в более жестких нейтронных полях [9]. Наряду с полевыми шпатами в основной массе идет новообразование высокотемпературной фазы – α -кристобалита, который формируется по обломкам аморфных пепловых частиц. В ряде образцов отмечается большое содержание аморфного кремнезёма, что сказывается на общем виде ИК спектров в области колебаний связей Si-O. Уровень пропускания при этом снижается примерно на 10 %.

ВЫВОДЫ

Проведенные оптико-спектральные исследования особенностей радиационно-стимулированного преобразования структурно-фазового состояния туфогенных витрокластических пород риолит-дацитового ряда, могут служить основанием для прогнозирования поведения матричных материалов на их основе. Одновременное присутствие в породах бесструктурной основной массы и рассеянных в ней обломочных вкрапленников кварца и полевых шпатов, практически не имеющих общих границ, ведет к разнонаправленному преобразованию отдельных компонентов породы. Кристаллизация аморфной основной массы и одновременная аморфизация кристаллических обломочных зерен предполагают создание благоприятных условий для длительного захоронения РАО в породах подобного состава.

С ростом поглощенной дозы γ -квантов (до $3 \cdot 10^8$ Гр) прослеживается последовательное нарастание признаков радиационного дефектообразования в туфах, что приводит к изменению их механических и оптико-спектральных характеристик. Однако степень их преобразования заметно ниже, чем в полнокристаллических горных породах облученных в тех же условиях [14].

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Дикий Н.П., Саенко С.Ю., Уваров В.Л., Шевякова Э.П. Применение ядерно-физических методов для изучения транспорта радионуклидов в гранитных породах // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-физические исследования.- 2000.- №2.- С.54-57.
2. Лифшиц Е.В., Шевякова Э.П., Поляшенко Р.Ф. Влияние радиационного воздействия на оптические свойства ряда неорганических материалов // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.- 1979.- Вып.3(11).- С.71-76.
3. Шевякова Э.П., Лифшиц Е.В., Поляшенко Р.Ф. О радиационной стойкости природных минералов различных структурных типов // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.- 1989.- Вып. 3(50).- С.81-85.
4. Шевякова Э.П., Лифшиц Е.В., Березняк Е.П. Влияние электронного облучения на структурно-фазовые изменения слоистых силикатов // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение.-1994.- Вып. 1(61).- С.70-73.
5. Кроуфорд Д.Х., Уителлс М.С. Обзор исследований влияния облучения на ковалентные и ионные кристаллы // Труды Международной конференции по мирному использованию атомной энергии.- Женева, 1958.- М.: - Госхимиздат.- Т.7.- С.430-535.
6. Костюков Н.С., Медведовская Э.И., Найдёнова Г.А. Исследование действия излучений на природные силикаты и некоторые керамические материалы // Экспериментальные исследования минералообразования в сухих окисных системах.- М.: Наука, 1972.- С.181-186.
7. Икрамов Г.И., Петровский Г.Т. Радиационно-оптические эффекты в кислородсодержащих кристаллах и стёклах.- Изд. ФАЕ Узбекской ССР, 1985.- 275 с.
8. Костюков Н.С., Харитонов Ф.Я., Антонова Н.П. Радиационная и коррозионная стойкость электрокерамики. - М.: Атомиздат, 1973.- 224 с.
9. Кривоконев Г.К., Сидоренко Г.А. Влияние радиоактивного облучения на некоторые породообразующие минералы // Радиоактивные элементы в горных породах: Тез. докл. Всес. сов. – Новосибирск, 1972. - С.75-76.
10. Дубровский В.В. Влияние облучения на минералы-силикаты. Материалы и конструкции защит ядерных установок.- М.: Атомиздат, 1974. - 190 с.
11. Дубровский В.В. Влияние облучения на свойства горных пород. Материалы и конструкции защит ядерных установок. - М.: Атомиздат, 1977.- 200 с.
12. Иванов П.И. Радиоактивные отходы. Переработка и захоронение // Атомная техника за рубежом.- 1992.- №9.- С.17-19.
13. Дикий Н.П., Саенко С.Ю., Уваров В.Л., Шевякова Э.П. Изучение влияния имитационного γ -облучения на миграцию радионуклидов в гранитных матрицах // Вопросы атомной науки и техники. Серия: Ядерно-физические исследования. - 2000. - Вып.2(36). - С.54-57.
14. Неклюдов И.М., Шевякова Э.П., Березняк Е.П., Уваров В.Л., Саенко С.Ю., Саенко Л.А. Влияние облучения на оптические свойства минералов гранитных пород Украины // Труды XVI Междунар. конф. по физике радиационных повреждений и радиационному материаловедению, Алушта, 2004. - С.218-219.

EFFECTS OF γ -IRRADIATION ON STRUCTURE-PHASE STATE OF TUFFS

E.P. Shevyakova, S.J. Sayenko, E.P. Bereznyak, L.A. Sayenko, E.A. Borts

National Science Center "Kharkov Institute Physics and Technology", Kharkov 61108, Akademicheskaya St.1

Effects of γ -irradiation on the structure-phase state of natural tuffs that could be used as matrix for placement of radioactive wastes was investigated by methods of crystalloptic (mineralogy-petrography) analysis and IR-spectroscopy. It was established, that increasing of dose γ -irradiation ($E=1,5$ MeV, $D_{\max}=3 \cdot 10^8$ Gy) cause reducing of mechanical strength and growth of secondary crystallization in feldspar-quartz bases mass. The degree of irradiation damage in tuffs lower than in full granular granites that connected with immediate contacts of phases in them.

KEY WORDS: γ -irradiation, radiation-induced defects, nature tuffs, crystalloptic, IR-spectroscopy.