

## ФІЗИКО-МАТЕМАТИЧНІ НАУКИ

УДК 549.451.1:539:1.03.06:548.4

<sup>1</sup>А.С. Литовченко, д-р фіз.-мат. наук<sup>2</sup>Ю.С. Полькова<sup>3</sup>В.В. Сьомка<sup>4</sup>О.Я. Кузнєцова, канд. техн. наук

## ВПЛИВ ГАММА-ОПРОМІНЕННЯ НА ФОРМУ ЛІНІЇ ЕЛЕКТРОННОГО ПАРАМАГНІТНОГО РЕЗОНАНСУ F-ЦЕНТРІВ У ГАЛІТІ

<sup>1,3</sup> Інститут геохімії, мінералогії та рудоутворення НАН України, e-mail: lytovchenko@mail.ru<sup>2</sup> НАУ, Інститут новітніх технологій, e-mail: lytovchenko@mail.ru<sup>4</sup> НАУ, кафедра теоретичної фізики, e-mail: nauint@gala.ru

*Досліджено форму лінії електронного парамагнітного резонансу F-центрів у структурі галіту NaCl методом моментів  $M_2$  залежно від дози гамма-опромінення (до 100 МГр) та температури відпалу (до 200 °С) гамма-опромінених зразків. Показано, що значення  $M_2$  відображає динаміку накопичення і рекомбінацію F-центрів у структурі NaCl. Виконані дослідження важливі для розробки методів прогнозу радіаційної стійкості галіту при використанні соленосних формацій для ізоляції радіоактивних відходів.*

**Вступ**

Однією із перспективних глибоких геологічних формацій для надійної ізоляції відпрацьованого ядерного палива (ВЯП) атомних станцій є соленосна [1]. Але для остаточного вирішення придатності соленосної формації для побудови в ній сховища ВЯП вона повинна відповідати ряду критеріїв, одним з яких є радіаційна стійкість галіту.

Відомо, що взаємодія радіаційного випромінювання із NaCl призводить до формування в його структурі радіаційних дефектів, які негативно впливають на його фізичні властивості.

Останнє може призвести до непридатності зазначеної формації для ізоляції в ній ВЯП. Основна проблема полягає у відсутності методів прогнозу радіаційної стійкості галіту.

Указаний метод може базуватися на закономірностях формування точкових радіаційних дефектів у галіті.

Найбільш поширеним дефектом у цій структурі є F-центр (електрон, локалізований у вакансії хлору), що є «зручним» дефектом для вивчення його методом електронного парамагнітного резонансу (ЕПР). Комплекс наукової інформації з параметрів цього дефекту (кількість, динаміка накопичення та рекомбінація, форма лінії поглинання, вплив температури тощо) дає змогу вирішити вказану проблему.

Досліджуючи форму лінії ЕПР F-центрів, отриману цінну наукову інформацію можна використати для визначення радіаційної стійкості галіту.

**Аналіз досліджень і публікацій**

Дослідженню F-центрів методом ЕПР у NaCl присвячено багато праць [2].

Переважно ці дослідження виконували на синтетичних, опромінених відносно малими дозами, зразках NaCl.

У зв'язку з розглядом соленосних формацій як перспективних для поховання в них ВЯП з'являються праці, присвячені дослідженню радіаційних дефектів у природних зразках NaCl [3]. Зокрема, у праці [4] методом ЕПР було показано, що динаміка накопичення F-центрів в природних та синтетичних зразках суттєво відрізняється.

Показано, що однією із причин є те, що у зразках природного галіту більше різних локальних неоднорідностей (порівняно із синтетичними), де переважно концентруються F-центри.

Основний висновок цих досліджень полягає у встановленні зв'язку між концентрацією F-центрів і фізико-механічними властивостями NaCl.

Відомо, що наукову інформацію з концентрації, динаміки накопичення та рекомбінації F-центрів отримують із інтенсивності та ширини лінії ЕПР. Інформацію з розподілу (гауссового, лоренцевого чи іншого) F-центрів у структурі галіту можна отримати шляхом аналізу самої форми лінії ЕПР. Згідно з працею [5] за малих концентрацій F-центрів у галіті (малі дози опромінення) лінія ЕПР має гауссову форму, у той час як вплив великих доз гамма-опромінення на її форму не досліджувався.

### Постановка завдання

Основна мета досліджень – визначення впливу гамма-опромінення на форму лінії ЕПР F-центрів у зразках природного галіту та зіставленні цих даних із даними динаміки їхнього накопичення.

### Об'єкти і методи досліджень

Об'єктом дослідження були безбарвні мінералогічно чисті зразки NaCl із соленосної формації Дніпровсько-Донецької западини.

Гамма-опромінення зразків виконували на джерелі  $^{60}\text{Co}$  потужністю 7,22 Гр/с при кімнатній температурі.

Максимальна сумарна поглинута доза становила 100 МГр. Природний галіт механічно подрібнили та виділили фракцію розміром частинок 0,3–0,4 мм, після чого опромінили різними дозами гамма-опромінення.

Опромінені зразки досліджували методом ЕПР. Спектри ЕПР F-центрів для опромінених різними дозами зразків записували при кімнатній температурі.

Зміну форми лінії ЕПР F-центрів контролювали за допомогою зміни величини її другого моменту  $M_2$ .

### Експериментальні результати

Радіаційний точковий дефект F-центрів у структурі NaCl з'являється внаслідок дії гамма-опромінення і являє собою електрон, локалізований у вакансії атома хлору. Його спектр ЕПР складається з поодинокі симетричної лінії ( $g=1,993$ ), інтенсивність якої залежить від дози гамма-опромінення (рис. 1).

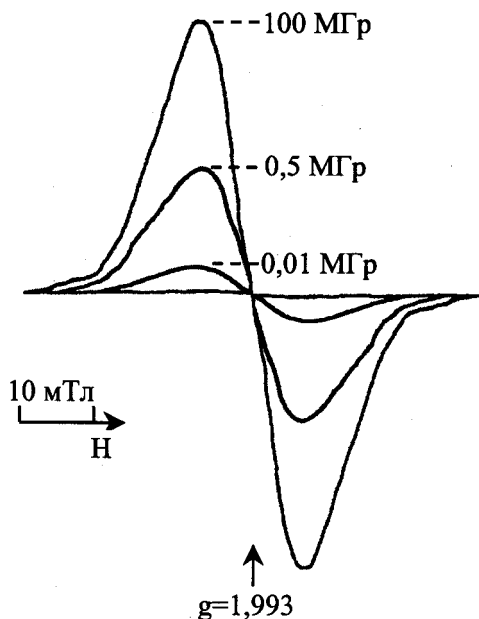


Рис. 1. Спектри ЕПР галіту (перша похідна сигналу) F-центрів за різних доз гамма-опромінення

Форма лінії визначається взаємним розміщенням F-центрів у структурі галіту. На форму лінії ЕПР впливають диполь-дипольна взаємодія між F-центрами, що залежить від відстані між ними, супернадтонка взаємодія між F-центром і магнітними ядрами натрію та хлору тощо.

Оскільки у структурі спостерігаються різні неоднорідності, де переважно формуються F-центри, то це буде позначатися на формі лінії, хоча зображені на рис. 1 спектри ЕПР F-центрів, на перший погляд, за формою між собою практично не відрізняються.

Це дає змогу характеризувати форму лінії методом моментів, що є чутливим до її змін. Форму лінії оцінили за другим моментом, який визначили графічним методом за формулою для випадку, коли спектр ЕПР поданий у вигляді першої похідної лінії її поглинання [6]:

$$M_2 = \frac{a^2 \sum n^3 g(h)}{3 \sum n g(h)},$$

де  $a$  – ціна кроку, Тл;  $n$  – порядковий номер кроку;  $g(h)$  – величина амплітуди для конкретного кроку.

На рис. 2 показано залежність  $M_2$  лінії ЕПР F-центрів зразків від дози  $D$  їхнього гамма-опромінення.

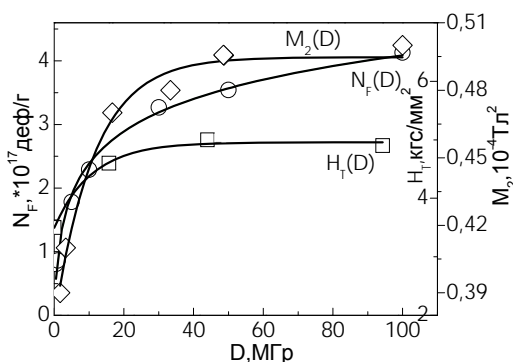


Рис. 2. Дозові залежності накопичення F-центрів  $N_F(D)$ , мікротвердості  $H_T(D)$ , форми лінії ЕПР F-центрів  $M_2(D)$  у структурі NaCl

Для зіставлення на рис. 2 показано дозові залежності концентрації  $N_F(D)$  цих дефектів і мікротвердості  $H_T(D)$  для цього зразка [4]. Дозові залежності  $N_F(D)$ ,  $H_T(D)$  та  $M_2$  мають аналогічний характер. Це означає, що зафіксовані методом ЕПР F-центри, крім яких унаслідок гамма-опромінення у структурі зразка формуються й інші, у т. ч. і непарамагнітні дефекти, суттєво впливають на фізичні властивості NaCl.

Унаслідок опромінення галіту дефекти в його структурі розподіляються нерівномірно [4]. У ділянках різних мікро- та макронеоднорідностей їхня концентрація набагато більша, ніж в однорідних областях.

Останнє зумовлює те, що в таких неоднорідностях F-центри швидше рекомбінують, оскільки там радіус рекомбінації менший, ніж в однорідних ділянках зразка. Це призводить до насичення дозової залежності накопичення F-центрів. Останнє позначається на формі лінії ЕПР та її ширині.

Ширина лінії за максимальної дози опромінення зменшилася з 12,0 до 11,5 мТл за рахунок обмінної взаємодії між центрами, що локалізовані у нанонеоднорідностях.

Останнє призводить до збільшення значення  $M_2$  за рахунок зміни форми вказаної лінії від гауссової до лоренцевої.

Вплив температури відпалювання F-центрів на форму лінії ЕПР зображено на рис. 3. Температурна залежність  $M_2(T)$  подібна до температурної залежності рекомбінації F-центрів  $N_F(T)$ .

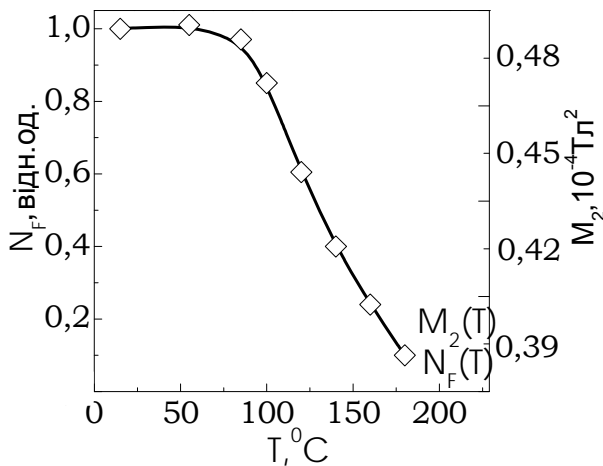


Рис. 3. Залежність другого моменту  $M_2$  лінії ЕПР F-центрів, та їхньої концентрації  $N_F$  від температури відпалу зразка NaCl, гамма-опроміненого дозою 100 МГр

Таким чином, форма лінії F-центрів змінюється навпаки – від лоренцевої до гауссової і повністю відображає динаміку рекомбінації цих дефектів у структурі NaCl. Дослідження показали, що для визначення концентрації F-центрів у структурі галіту можна використовувати значення другого моменту  $M_2$ .

### Висновок

Форма лінії ЕПР F-центрів відображає динаміку накопичення та рекомбінації радіаційних дефектів у структурі NaCl. Перехід від гауссового розподілу F-центрів у зразку до лоренцевого пов'язано з утворенням у структурі зразка, опроміненого дозою більше 10 МГр агрегатів, в яких спостерігається обмінна взаємодія між вказаними центрами.

### Література

1. Лавров Н.П., Омеляненко Б.И., Величкин В.И. Геологические аспекты проблемы захоронения радиоактивных отходов // Геозкология. – 1994. – №6. – С. 3–20.
2. Шварц К.К., Экманис Ю.А. Диэлектрические материалы: радиационные процессы и радиационная стойкость. – Рига: Зинатне, 1989. – 187 с.
3. Gies H., Hild W., Kühle T., Mönig J. Radiation effects in rock salt: a status report. – Munchen: GSF, 1994. – 152 p.
4. Литовченко А.С., Полькова Ю.С., Сьомка В.В., Кузнецова О.Я. Дослідження динаміки накопичення та рекомбінації радіаційних дефектів у структурі галіту методом електронного парамагнітного резонансу // Вісн. НАУ. – 2004. – №4. – С. 172–175.
5. Сигмен А. Мазеры. – М.: Мир, 1966. – 520 с.
6. Блюменфельд Л.А., Воеводский В.В., Семенов А.Г. Применение электронного парамагнитного резонанса в химии. – Новосибирск: Изд-во Сиб. отд-ние АН СССР, 1962. – 240 с.

Стаття надійшла до редакції 05.10.05.

А.С. Литовченко, Ю.С. Полькова, В.В. Семка, Е.Я. Кузнецова

Влияние гамма-облучения на форму линии электронного парамагнитного резонанса F-центров в галите  
Исследовано форму линии электронного парамагнитного резонанса F-центров в структуре галита NaCl методом моментов  $M_2$  в зависимости от дозы гамма-облучения (до 100 МГр) и температуры отжига (до 200 °C) гамма-облученных образцов. Показано, что значение  $M_2$  отображает динамику накопления и рекомбинацию F-центров в структуре NaCl. Выполненные исследования важны для разработки методов прогноза радиационной устойчивости галита при использовании соленосных формаций для изоляции радиоактивных отходов.

A.S. Lytovchenko, J.S. Polkova, V.V. Syomka, H.J. Kuznetsova

The influence of gamma-radiation on the form of Electronic spin resonance-line of F-centers in halite  
The form of Electronic spin resonance-line of F-centers in the halite structure depending on gamma-radiation dose (up to 100 MGy) and annealing temperature (up to 200 °C) of gamma-irradiated samples have been studied by the method of moments  $M_2$ . It was shown that  $M_2$ -value represented the dynamics of F-centers accumulation and recombination in the NaCl-structure. The obtained results are important for the development of prognosis method of halite radiation stability when using rock salt formations as candidates for creation the geological high-level radioactive waste repository.