

Воздействие нейтронного и протонного излучений на намагниченность биотита

© У. Абдурахманов*, А.Б. Грановский, А.А. Радковская, М.Х. Усманов*, Ш.М. Шарипов*, В.П. Югай*

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова,
119899 Москва, Россия

* Высшая пожарно-техническая школа,
Ташкент, Узбекистан

(Поступила в Редакцию 1 июня 2001 г.)

Выполнен анализ полевой зависимости намагниченности биотита в исходном состоянии, после термической обработки при температуре 1000°C в течение 15 min и после облучения нейтронами энергией 14 MeV дозой $1.2 \cdot 10^{13}$ 1/cm² и протонами энергией 3 MeV дозой $2.2 \cdot 10^{14}$ 1/cm². Показано, что сильное увеличение намагниченности биотита после воздействия нейтронов и протонов можно отнести за счет образования в радиационных тепловых пиках расплава окислов и "замораживания" в них высокотемпературных фазовых состояний, соответствующих магнетиту или твердому раствору магнетита и гематита.

Интерес к изучению радиационных эффектов в биотите обусловлен возможностями применения этого минерала в качестве естественного индикатора воздействия радиационных излучений. В частности, использование биотита в качестве трекового детектора стимулировало исследование действия протонного излучения на его мессбауэровские спектры [1]. Указанное исследование выполнено с помощью сравнения действия на биотит протонного излучения и термической обработки. Установлено, что изменения в мессбауэровских спектрах, вызванные протонным излучением и термической обработкой в вакууме, подобны. Позднее было исследовано влияние нейтронного и протонного излучений на намагниченность биотита также при сравнении действия указанных излучений и термической обработки [2,3]. Установлено, что облучение нейтронами и протонами и термическая обработка сильно изменяют намагниченность биотита, причем их действие противоположно: облучение нейтронами и протонами увеличивает намагниченность, а термическая обработка уменьшает ее. Явление сильного изменения намагниченности биотита в результате воздействия указанных видов облучения можно использовать в экспертизе мест радиационных катастроф наряду с использованием "магнитного следа" термического воздействия в экспертизе мест пожаров [4–6]. Недавно нами выполнен анализ наблюдаемых экспериментально зависимостей магнитной восприимчивости биотита от температуры и времени термической обработки; предложены вероятные физико-химические процессы, формирующие указанные зависимости [7]. Последнее позволяет вновь обратиться к обсуждению природы радиационных эффектов в биотите. Заметим, что для изучения радиационных эффектов в твердом теле использование нейтронов является более корректным, чем протонов, так как при этом в исследуемых образцах с размерами, обычно используемыми в лабораторных условиях, обеспечивается более равномерное распределение повреждений в кристаллической решетке.

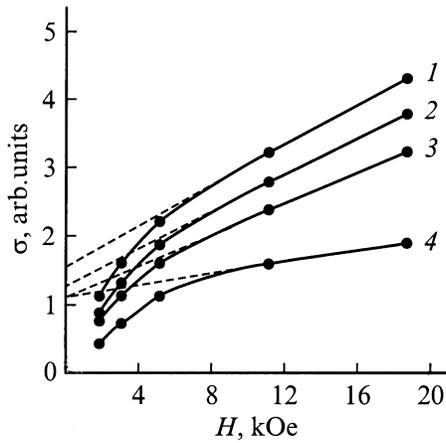
1. Интерпретация воздействия потока нейтронов

Как известно, термическая обработка биотита при температурах более 500°C ведет к необратимому изменению его магнитной восприимчивости [8]. Поэтому можно ожидать, что наблюдавшееся в [2,3] изменение намагниченности биотита при воздействии нейтронов также связано с процессами, имеющими термическую природу.

В соответствии с результатами интерпретации эффектов термического воздействия на биотит [7,9] при нагреве в нем протекают следующие физико-химические процессы, формирующие зависимость магнитной восприимчивости этого минерала от температуры и времени термической обработки: окисление ионов Fe²⁺ до трехвалентного состояния, образование субмикронеоднородных областей путем агрегации части ионов Fe³⁺ вокруг вакансий с переходом этих ионов в спин-спаренное состояние, образование при высоких температурах гематитовой фазы и выделение при охлаждении частиц гематита Fe₂O₃.

Указанное выше изменение намагниченности биотита при облучении нейтронами не может быть связано только с первым из указанных процессов. Действительно, магнитный момент ионов Fe³⁺ равен $5.9 \mu_B$, т.е. превышает магнитный момент ионов Fe²⁺, равный $5.4 \mu_B$, всего лишь на 10%; и следовательно, переход даже всех ионов Fe²⁺ в биотите в трехвалентное состояние не может обеспечить наблюдаемую величину изменения намагниченности (при использованной в эксперименте максимальной дозе $3.5 \cdot 10^{13}$ 1/cm² изменение намагниченности во внешнем магнитном поле напряженностью 18 kOe достигало почти 50%).

То же относится и ко второму из указанных процессов. Образование спин-спаренных состояний в субмикронеоднородных областях ведет к тому, что магнитные моменты ионов, находящихся в этих состояниях, не вносят вклада в намагниченность; следовательно,



Полевая зависимость намагниченности σ биотита при 4.2 К. 1 — после облучения нейтронами энергией 14 MeV и дозой $1.2 \cdot 10^{13}$ 1/cm², 2 — после облучения протонами энергией 3 MeV и дозой $2.2 \cdot 10^{14}$ 1/cm², 3 — в исходном состоянии, 4 — после термической обработки при температуре 1000°С в течение 15 min.

суммарная намагниченность в результате воздействия потока нейтронов должна, напротив, уменьшиться, а не увеличиться.

Третий из перечисленных выше процессов также не может быть ответственным за наблюдаемое изменение намагниченности. При температуре 4.2 К гематит является чистым антиферромагнетиком с равным нулю суммарным магнитным моментом. Поэтому появление гематитовой фазы в образцах биотита в результате высокотемпературной термической обработки должно приводить к уменьшению измеряемой при 4.2 К намагниченности этих образцов, а не к ее увеличению (часть магнитных моментов атомов железа упорядочивается антиферромагнитно и не участвует в процессе намагничивания).

Таким образом, облучение нейтронами вызывает протекание в биотите физико-химических процессов, отличающихся от тех, которые рассматриваются как ответственные за поведение магнитной восприимчивости этого минерала при термической обработке. Для определения этих процессов проанализируем графики полевой зависимости намагниченности биотита, представленные на рисунке.

Графики полевой зависимости намагниченности, измеренной при 4.2 К на образцах биотита в исходном состоянии (до воздействия каких-либо внешних факторов), показывают наличие в этих образцах парамагнитной фазы (ей соответствует линейный участок кривой намагничивания), а также магнитоупорядоченной фазы с отличным от нуля суммарным магнитным моментом (ей соответствует нелинейный участок кривой намагничивания, наблюдаемый в области малых значений напряженности внешнего магнитного поля). Как видно из рисунка, термическая обработка не изменяет содержания в образцах магнитоупорядоченной фазы (продолжения

линейного участка кривых намагничивания биотита до и после термической обработки пересекают ось ординат в одной точке). Облучение нейтронами ведет к увеличению содержания в биотите магнитоупорядоченной фазы с отличным от нуля суммарным магнитным моментом (продолжение линейного участка кривой намагничивания образца, подвергнутого облучению нейтронами, пересекает ось ординат при более высоких значениях намагниченности, чем продолжение соответствующего участка кривой намагничивания образца в исходном состоянии). Указанное увеличение содержания магнитоупорядоченной фазы и может быть интерпретировано в рамках модели теплового пика.

Согласно представлениям о тепловом пике при воздействии нейтронов в некотором объеме решетки биотита может мгновенно выделиться энергия, достаточная для плавления [10]. Благодаря очень малому времени жизни теплового пика образовавшийся расплав окислов должен быстро остыть, в результате чего высокотемпературные фазовые состояния окажутся "замороженными" в образце.

Как следует из фазовой диаграммы состояния системы Fe—O, в области, богатой кислородом, при высоких температурах обширную область гомогенности имеет магнетит Fe₃O₄ [11]. Поэтому наблюдаемое экспериментально увеличение магнитоупорядоченной фазы в биотите и соответственно увеличение его намагниченности при облучении нейтронами можно отнести за счет образования в биотите магнетитовой фазы и выделения частиц магнетита. В пользу такого предположения указывают также некоторые результаты изучения радиационных эффектов в биотите при облучении протонами, которые будут приведены далее. Добавим, что некоторая часть вклада (не более 10%) в рассматриваемое изменение намагниченности биотита может быть обусловлена указанным выше процессом окисления ионов Fe²⁺ до Fe³⁺.

Заметим, что в зависимости от парциального содержания кислорода над расплавом окислов и скорости его охлаждения магнитоупорядоченная фаза, образуемая в результате воздействия потока нейтронов, может представлять собой твердый раствор магнетита и гематита. В этом растворе гематит образует фазу с недостатком, а магнетит — с избытком кислорода. Согласно указанной выше фазовой диаграмме системы Fe—O поле магнетита сужается с понижением температуры за счет расширения поля, соответствующего твердому раствору магнетита и гематита. Таким образом, чем более низкотемпературной является "замороженная" фаза, тем выше в ней содержание гематитовой компоненты. Напомним, что при термической обработке при 900–1000°С магнитоупорядоченная фаза, образуемая в биотите в результате термических процессов, состоит из гематита и определяет сильное увеличение магнитной восприимчивости биотита в результате указанной термической обработки [7,9]. Гематитовая компонента при ее наличии в фазе, образованной в биотите в результате воздействия

нейтронов, не вносит, однако, вклада в намагниченность при 4.2 К, так как при этой температуре гематит является чистым антиферромагнетиком.

2. Интерпретация воздействия протонов

Как следует из рисунка, намагниченность биотита в результате облучения протонами энергией 3 MeV также значительно увеличивается, причем, как и в случае облучения нейтронами, за счет увеличения содержания магнитоупорядоченной фазы.

В упомянутой выше работе [1], исходя из наблюдаемого подобия изменений в мессбауэровских спектрах биотита, облученного протонами и подвергнутого термической обработке в вакууме, сделан вывод, что причиной этих изменений является окисление ионов Fe^{2+} до Fe^{3+} в тепловых пиках. Очевидно, что указанный процесс окисления имеет место при облучении протонами, как один из перечисленных выше процессов, протекающих в биотите при термической обработке, который наряду с другими процессами определяет необратимое изменение магнитной восприимчивости этого минерала. Однако увеличение намагниченности биотита при облучении протонами так же велико, как при облучении нейтронами, и по тем же причинам, которые рассмотрены выше при обсуждении воздействия нейтронов, не может быть отнесено только на счет окисления ионов Fe^{2+} в тепловых пиках.

Исходя из тех же соображений, которые приведены при интерпретации воздействия нейтронов, рассматриваемое изменение намагниченности образцов биотита при облучении протонами также можно отнести за счет "замораживания" в них магнетитовой фазы и выделения частиц магнетита.

Здесь следует отметить, что данные работы [1] указывают в пользу такой интерпретации воздействия протонов (а также нейтронов) на намагниченность биотита. Действительно, в полученных в этой работе мессбауэровских спектрах при высоких дозах облучения и температуре жидкого азота наблюдался вклад от магнитоупорядоченной фазы, причем соответствующие этой фазе полосы в спектрах по положению соответствовали полосам в спектрах магнетита. В этой же работе на рентгенограммах наблюдались линии, отнесенные к магнетиту.

Таким образом, при обсуждении эффектов воздействия протонного излучения на намагниченность биотита, а также на мессбауэровские спектры этого минерала наряду с окислением ионов Fe^{2+} до Fe^{3+} следует рассматривать также процесс, включающий в себя образование в тепловых пиках расплава окислов и "замораживание" в них высокотемпературных фазовых состояний, соответствующих магнетиту или твердому раствору магнетита и гематита.

Список литературы

- [1] A. Kotlicki, N.B. Olsen, J.S. Olsen. *Rad. Effects* **28**, 1 (1976).
- [2] М.Х. Усманов. В.П. Югай, А.Б. Грановский. Л.В. Навалихин, А.В. Данилов, Ж. Саидмурадов, М.И. Эпов. *ДАН УзССР* **8**, 31 (1989).
- [3] А.Б. Грановский. Л.В. Навалихин, В.Е. Роде, Ж. Саидмурадов, М.Х. Усманов, М.И. Эпов. *ФТТ* **32**, 2479 (1990).
- [4] М.Х. Усманов. *Пожаровзрывобезопасность* **4**, 24 (1997).
- [5] Н.Н. Брушлинский, А.В. Данилов, К.М. Муминов, Д.Х. Исраилов, М.Х. Усманов, В.П. Югай. *Пожаровзрывобезопасность* **4**, 95 (1998).
- [6] N.N. Brushlinsky, A.V. Danilov, K.M. Muminov, D. Israilov, V. Stetsuk, M.Kh. Usmanov. *Fire Technology* **33**, 3, 195 (1997).
- [7] М.Х. Усманов. В.П. Югай, У. Абдурахманов, Ш.М. Шарипов. *Материалы научно-практической конференции. ВПТШ МВД РУз, Ташкент* (2000).
- [8] А.А. Аминов, А.В. Данилов, Л.А. Скачкова, М.Х. Усманов, В.П. Югай. *Докл. АН УзССР* **8**, 31 (1988).
- [9] M.Kh. Usmanov, V.P. Yugai, Sh.M. Sharipov, U. Abdurakhmanov. *Eurasian Conference on Nuclear Science and its Application. Izmir, Turkey* (2000). Abstracts, P. 311.
- [10] Б. Келли. *Радиационное повреждение твердых тел. Атомиздат, М.* (1970). С. 340.
- [11] Ю.Д. Третьяков. *Термодинамика ферритов. Химия, Л.* (1967). С. 304.