

12. Лазаренков, В.Г. Признаки твердофазной природы внедрения Кондёрского массива и проблема мантийного диапиризма / В.Г. Лазаренков, Э.А. Ланда // Изв. АН СССР. Сер. Геол. — 1992. — № 6. — С. 102–113.

13. Малич, К.Н. А платиноносности и геохимической структуре ультрабазитов Кондёрского массива / К.Н. Малич, Ю.В. Бурков // Изв. вузов. Геология и разведка. — 1990. — № 4. — С. 46–58.

14. Октябрьский, Р.А. Редкие шпинелиды из контактового ореола Кондёрского массива / Р.А. Октябрьский, А.М. Ленников, С.А. Щека и др. // Минералогический журнал. — 1992. — Т. 14. — № 2. — С. 38–47.

15. Орлова, М.П. Геологическое строение и генезис Кондёрского ультрамафитового массива / М.П. Орлова // Тихоокеанская геология. — 1991. — № 1. — С. 80–88.

16. Разин, Л.В. Платиновая металлоносность Инаглинского массива ультраосновных и щелочных пород (Алданский щит / Л.В. Разин: Автореф. дисс... канд. геол.-мин. наук. — М., 1966.

17. Разин, Л.В. Месторождения платиновых металлов / Л.В. Разин / Рудные месторождения СССР. Т. 3. — М.: Недра, 1974. — С. 96–116.

18. Сушкин, Л.Б. Кондёр — дальневосточная жемчужина России / Л.Б. Сушкин // Наука и природа Дальнего востока. — 2006. — № 2. — С. 121–139.

© Архангельская В.В., 2019

Архангельская Валентина Вячеславовна

ГЕОФИЗИКА

УДК 3311.02

Аллахвердиев К.Р., Ахмедов Э.А. (Национальная Академия Авиации Азербайджанской Республики), Гумбатов Ф.Ю. (Институт «Радиационных проблем» НАН Азербайджанской Республики)

ГАММА–СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИЙ АНАЛИЗ РАДИОНУКЛИДНОГО СОСТАВА ДАШ-САЛАХЛИНСКОЙ БЕНТОНИТОВОЙ ГЛИНЫ И РОЛЬ ДИФфуЗИОННЫХ ПРОЦЕССОВ В МИГРАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ

*В статье рассмотрены вопросы анализа радионуклидного состава Даш-Салахлинской бентонитовой глины, определены уровни радиоактивности образцов и исследована роль диффузионных процессов в миграции этих радионуклидов. С этой целью был использован γ -спектрометрический метод анализа. Показано, что очень высокая радиоактивность бентонитовой глины связана с большим содержанием K^{40} , Ra^{226} , Th^{234} в ее составе и обусловлена активными экзогенными и эндогенными миграционными процессами. **Ключевые слова:** радиоактивность, радионуклид, миграция, диффузия, сорбция, осадочная порода, бентонитовая глина.*

Allahverdiev K.R., Akhmedov E.A. (National Academy of Aviation of the Republic of Azerbaijan), Gumbatov F.Yu. (Institute of «Radiation problems» of the national Academy of Sciences of the Republic of Azerbaijan)

GAMMA–SPECTROMETRIC ANALYSIS OF THE RADIONUCLIDE COMPOSITION OF THE DASH-SALAKHLINSKY BENTONITE CLAY AND THE ROLE OF DIFFUSION PROCESSES IN RADIONUCLIDE MIGRATION

*This article deals with the analysis of the radionuclide composition of dash-Salakhlins bentonite clay and the role of diffusion processes in the migration of these radionuclides. With this purpose γ -spectrometric method of analysis were used. It is shown that very high radioactivity of bentonite clay is associated with a high content of $40K$, $226Ra$, $232Th$ in its composition and is caused by active exogenous and endogenous migration processes. **Keywords:** radioactivity, radionuclide, migration, diffusion, sorption, sedimentary rock, bentonitic clay.*

Введение

В ходе эволюции земной коры под действием различных физических, механических, химических, физико-химических, радиометрических процессов происходит миграция элементов и их соединений. Согласно [2] применение радиометрических и геохимических методов в комплексе с геофизическими методами имеет большое практическое значение при изучении физических свойств горных и осадочных пород. На самом деле без выяснения структурных особенностей изучаемых пород трудно правильно истолковать геофизические и геохимические аномалии, связанные непосредственно с данной структурой. Однако и в этом случае остаются невыясненными возможные пути миграции из залежи в ареал рассеяния химических элементов. В процессе образования рудных месторождений, минералов и осадочных пород вокруг них возникают первичные ореолы рассеяния, обогащенные теми или иными элементами, преимущественно входящими в состав месторождения. Факторами миграции и изменения элементарного химического состава земной коры являются непрерывно идущие процессы выветривания и денудации, гравитационной дифференциации. В этих процессах немаловажную роль играют радиоактивные элементы и их миграция.

В результате выше упомянутых процессов возникают также коллоидно-дисперсные системы, состоящие из частиц диаметром 10^{-5} – 10^{-7} см. Процессы сорбции и диффузии элементов коллоидными средами имеют важное значение для захвата и накопления в них элементов, мигрирующих из глубины в результате разрушения первоначальных горных пород. Интенсивность выветривания убывает с глубиной по мере ослабления действующих на земной поверхности физических и химических факторов. По этой причине верхние горизонты земной коры характеризуются более полным разложением первоначальных минералов. Одним из основных факторов рассеяния и миграции элементов и их соединений из мест образования и накопления в верхних слоях земной коры является гравитационная дифференциация жидкостей и газов в земной коре, сопряженная с их диффузией [2, 8]. В минералах

и горных породах, содержащих уран и торий, накапливаются продукты их распада и с течением времени устанавливается радиоактивное равновесие, при котором количество вновь образующихся и распадающихся атомов промежуточных элементов уравнивается, и их содержание в рудах становится стабильным. Это выражается с помощью следующей формулы [2]:

$$N_1 \lambda_1 = N_2 \lambda_2 = \dots = N_n \lambda_n \quad (1),$$

где N_1 — число атомов родоначального элемента; N_2, \dots, N_n — число атомов промежуточных элементов; λ — постоянная распада.

Уравнение (1) справедливо при условии, что период полураспада родоначального элемента намного больше периода полураспада промежуточных элементов. Наиболее богаты радиоактивными элементами небольшие по размерам, молодые по возрасту интрузии изверженных пород. Осадочные породы содержат примерно такое же количество радиоактивных элементов, как и изверженные породы. При этом наиболее радиоактивны сланцы и глины, сорбирующие свойства которых выше, чем других пород [2, 3, 8].

Детальный анализ природных систем перемещения (дифференциации) мигрантов в системах ареалов рассеяния позволяет научно обосновать моделирование сложных миграционных процессов. Для оценки развития в пространстве и во времени ареалов рассеяния отдельных радионуклидов используются природные аналоги, в первую очередь месторождения радиоактивных элементов [1, 4, 9, 11].

Способность поглощать, удерживать и сорбировать в своем объеме различные вещества и отдельные элементы, в том числе радионуклиды, является важнейшим свойством глинистых пород. В литературе [12] (15.07.2018) дана классификация осадочных материалов по степени радиоактивности в следующей последовательности:

1. Низкой активности (до 3,65 Бк/кг) — кварц, кальцит, доломит, сидерит, ангидрит, гипс, каменная соль.

2. Средней активности (3,65; 36,5 Бк/кг) — лимонит, барит, магнетит, турмалин, корунд, гранат, роговая обманка.

3. Повышенной активности (36,5; 365 Бк/кг) — слюда, глины, полевые шпаты, калийные соли, апатиты, глаукониты, тарапели, каолин, гидрослюды, глинистый бентонит, обсидиан, сильвин.

4. Очень высокой активности (>365 Бк/кг) — циркон, монацит, ортит.

Поглощающая способность горных пород в отношении радионуклидов определяется коэффициентом распределения K_d , который вычисляется по формуле:

$$K_d = C_{мв} / C_{ж} = (I_0 - I_p) / I_p \times V/m,$$

где $C_{мв}$ — концентрация радионуклида, поглощенного твердой фазой горной породы;

$C_{ж}$ — концентрация радионуклида в растворе после установления равновесия;

I_0 — концентрация радионуклида в растворе до контакта с твердой фазой;

I_p — концентрация радионуклида в растворе после установления равновесия с твердой фазой; V — объем раствора, мл; m — масса твердой фазы (породы, минерала).

С другой стороны, коэффициент распределения K_d называют коэффициентом сорбции или постоянной распределения. Используются размерности либо в см³/г, либо м³/кг. В свою очередь, K_d по своему содержанию аналогичен одной из количественных характеристик геохимических барьеров, определяющих контрастность:

$$K = C_a / C_{\phi},$$

где C_a — среднее содержание рассматриваемого компонента в аномалии (на барьере); C_{ϕ} — фоновое содержание компонента в окружающей среде (миграционном потоке).

Существует дополнительная характеристика проницаемости барьера — величина отношения скоростей движения частиц растворенного вещества и растворителя, т.е. жидкой фазы в системе миграции [1, 10]. С коэффициентом распределения K_d связан коэффициент задержки R , определяющий величину отставания распространения вещества от распространения жидкой фазы:

$$R = I + K_d.$$

Коэффициент распределения и коэффициент задержки являются основными параметрами, которые экспериментально определяют задерживающие (барьерные) свойства горных пород и широко используются в расчетных формулах и моделях миграции радионуклидов [6, 9, 10, 13].

Постановка задачи

В настоящее время имеется большое число научных статей, в которых отражены процессы образования, миграции и депонирования естественных и искусственных радионуклидов в биосфере. Однако из-за многообразности и сложности этих процессов далеко не во всех случаях возможно их качественное описание. Для всестороннего понимания этих процессов следует учесть физические, химические, геофизические, геохимические, физико-химические и биохимические свойства радионуклидов, а также закономерности процессов их миграции в различных областях атмосферы, гидросферы и литосферы [2–13].

Термин «бентонит», получивший широкое распространение, объединяет монтмориллонитовые глины, которые образовались в результате диагенеза вулканического стекла и пепла в морских бассейнах. Поэтому считают целесообразным термины «бентониты», «смектиты» заменить на минерально-монтмориллонитовые глины с выделением бентонитов, как глины определенного генезиса [5, 6, 7].

Одной из крупных компаний по добыче и переработке бентонитовых глин является ООО «Компания Бентонит». Сырьевой базой являются месторождения «Десятый Хутор» в Хакасии, Зырянское в Курганской области и Даш-Салахлинское в Азербайджане. Ниже

Таблица 1
Химический состав бентонитовых глин ООО «Компания Бентонит» [14]

Химическое соединение, %	Месторождение		
	«Десятый хутор»	Зырянское	Даш-Салахлинское
SiO ₂	59,77	57,37	58,60
Al ₂ O ₃	19,80	19,40	13,40
Fe ₂ O ₃	4,22	5,97	4,70
FeO	0,56	0,94	0,18
TiO ₂	0,55	0,15	0,39
CaO	1,06	1,81	2,05
MgO	2,95	3,01	2,30
P ₂ O ₅	0,19	0,04	0,11
SO ₃	0,08	0,10	0,25
K ₂ O	1,94	1,03	0,39
Na ₂ O	0,90	0,78	2,30
п.п.п	7,98	9,4	15,33
<i>Итого</i>	<i>100</i>	<i>100</i>	<i>100</i>

приведен (табл. 1) химический состав бентонитовых глин ООО «Компания Бентонит» [14] (05.08.2018). В этой таблице указан химический состав бентонитовой глины (с процентным содержанием химических соединений) Даш-Салахлинского месторождения. Это месторождение относится к осадочному типу, которое образовалось в озерных континентальных условиях. Состав залежей характеризуется монтмориллонитовыми и гидрослюдасто-монтмориллонитовыми глинами. По некоторым данным эта глина сильно отличается от глин месторождения «Десятый Хутор» и Зырянское, так как добываемые бентонитовые глины Даш-Салахлинского месторождения содержат более 85 % монтмориллонита, в объемном комплексе которого преобладают катионы натрия и магния.

Физические и химические свойства Даш-Салахлинской бентонитовой глины изучены достаточно глубоко и установлено, что эта глина характеризуется высокой набухаемостью, коллоидальностью, пластичностью и максимально возможной для глин связующей способностью, что и выводит ее в разряд лучших в мире. Следует отметить, что одна из основных характеристик этой глины, а именно радиоактивность — не достаточно изучена. Учитывая широкое использование бентонитов глины в металлургической, нефтегазовой, литейной, нефтехимической, нефтеперерабатывающей, химической, легкой, сельскохозяйственной промышленности, а также для улучшения плодородности почв несомненно следует учесть ее радиационные свойства с целью безопасности рабочего персонала и потребителя готовой продукции.

Исходя из вышеизложенного, была поставлена цель анализировать радионуклидный состав Даш-Салахлинской бентонитовой глины и исследовать роль диффузионных процессов в миграции радионуклидов.

Методы определения радиоактивности. Экспериментальная методика.

При изучении радиоактивности горных пород и минералов и определении содержания в них радиоактивных элементов применяются различные методы, использующие разнообразные физические (в первую очередь радиоактивные) и другие свойства урана, тория и продуктов их распада, а также последствия радиоактивности (радиационные дефекты кристаллической решетки минералов, радиогенные продукты распада и т.д.). Основными методами, используемыми в ядерной геофизике и ядерной геохимии, являются:

1. Радиометрические (полевые и лабораторные) методы определения α , β и γ активности и оценки содержания радиоактивных (естественных и искусственных) элементов по уровню активности препаратов.

2. Радиохимические (лабораторные) методы определения, содержания радиоактивных элементов, включающие химическое выделение изотопов и последующее измерение их активности.

3. Радиографические (лабораторные) методы оценки пространственного распределения урана и тория в горных породах и минералах.

4. Люминесцентные методы определения урана по свечению сплава (лабораторные методы) или вторичных урановых минералов отенита, трекенгерита и др. (полевые лабораторные методы).

5. Колориметрические (лабораторные) методы оценки содержания урана и тория с предварительным химическим концентрированием элементов.

6. Рентгеноспектральные (лабораторные) методы определения урана и тория.

7. Нейтронно-активационные (преимущественно лабораторные) методы определения содержания и формы нахождения урана.

Основными методами изучения естественной радиоактивности земной коры и поисков скоплений радиоактивных минералов являются радиометрические методы, в первую очередь различные модификации интегральной дифференциальной спектрометрической гамма-съемки [3]. В основе гамма-спектроскопического метода лежит различие спектрального состава гамма-излучения уранового и ториевого семейств, а также калия.

В нашей работе (в качестве пробного материала) для радионуклидного анализа были взяты 5 пробных материалов из Даш-Салахлинской бентонитовой глины. При этом была использована трендовая карта, построенная автором работы [15] (09.06.2018), которая дала возможность следить за закономерным и случайным изменением параметров горных осадочных пород в Даш-Салахлинском месторождении в процессе взятия проб.

Исследования радионуклидного состава бентонитовой глины, взятой из разных (5, 10, 15, 20, 25 м) глубин месторождения, были проведены в институте «Радиационных проблем» НАН Азербайджанской Республики. Определение радионуклидного состава осуществлялось в γ -спектрометрической системе имеющимся Ge детектором с высокой избирательной способностью

(производство фирмы «CANBERRA» на основе стандартных методик EPA901.1 и ASTM C140204 (2009).

Пробы помещались в пластиковую посуду цилиндрической формы, закрывались крышкой и затем покрывались тонким слоем парафина для создания герметичности. До анализа спектр стандартного источника, состоящий из изотопов Na²², Eu²², при закрывании дает качественное обеспечение, а спектр камеры, передвигаясь, осуществляет контроль над процедурами качества. Пробы были помещены в специальную свинцовую конструкцию и в течение 24 часов были сняты спектры. Пользуясь обеспечением программы «ISOCS LabSOCS» была рассчитана геометрическая эффективность посуды. Пользуясь программой обеспечения «Genie-2000» была претворена в жизнь идентификация радионуклидов и оценка их активности. В это время были использованы γ -линии 186,1 keV; Ra²²⁶, 351,9 keV; Pb²¹⁴, 609,32 keV, 1120,28 keV и 1764,49 keV; Bi²¹⁴, 338,40 keV; Ac²²⁸, 583,14 keV и 2614,5 keV; Tl²⁰⁸, 911,07 keV, 964,60 keV и 968,90 keV; Ac²²⁸, 1460,8 keV; K⁴⁰, 661,6 keV; Cs¹³⁷, 604,7 keV; Cs¹³⁴ и 1173 keV Co⁶⁰. В образцах наблюдались только продукты распада K⁴⁰, U²³⁸, Th²³² — радионуклидов естественного происхождения.

Экспериментальные результаты и их обсуждение

Результаты анализа радионуклидного состава Даш-Салахлинской бентонитовой глины даны в табл. 2, где видно, что полученные для 4-го и 5-го образцов соответственно взятых из 20 и 25-метровой глубины значения радиоактивности (376,3 Бк/кг) и (369,1 Бк/кг) сильно отличаются от значений радиоактивности (36,5–365 Бк/кг), установленных согласно классификации осадочных материалов по степени радиоактивности (повышенная активность). Тем самым, значения радиоактивности этих образцов соответствуют очень высокой активности по классификации осадочных материалов по степени радиоактивности.

Таблица 2

Радионуклидный состав Даш-Салахлинской бентонитовой глины

Бк/кг	1	2	3	4	5
K ⁴⁰	62,14	91,7	30,24	163,8	136,9
Co ⁶⁰	<1,8	<1,9	<2,07	<1,9	<1,7
Cs ¹³⁴	<2,3	<2,5	<2,5	<2,4	<2,2
Cs ¹³⁷	<2,1	<2,3	<2,2	<2,1	<2,1
Tl ²⁰⁸	14,74	14,77	11,51	11,46	12,63
Bi ²¹⁰	<2,4	<2,6	<2,5	<2,4	<2,2
Bi ²¹²	40,41	32,23	29,05	19,08	29,27
Pb ²¹²	48,12	48,69	37,08	34,26	40,50
Bi ²¹⁴	<5,4	27,17	26,11	22,82	17,93
Pb ²¹⁴	14,38	30,61	27,59	26,46	18,71
Ra ²²⁶	46,09	26,82	25,61	61,43	18,01
Ac ²²⁸	42,50	42,60	37,59	33,49	39,17
Th ²³⁴	<56,6	<60,61	<56,76	<56,66	<70,56
U ²³⁵	2,63	5,41	4,79	3,5	3,42
Итого:	276	291,2	204,1	376,3	369,1

Это говорит о том, что такую высокую активность не может иметь глинистый бентонит. Такое противоречие с литературными данными [12] приводит к мысли о том, что причину надо искать в радионуклидном составе этих образцов. На самом деле, если обратить внимание на радионуклидный состав вышеуказанных образцов, мы увидим, что в 4 образце очень высокая активность получается за счет K⁴⁰ (163,8 Бк/кг), Ra²²⁶ (61,43), Th²³⁴ (< 56,76 Бк/кг) и в 5 — за счет K⁴⁰ (136,9 Бк/кг), Pb²¹² (40,50 Бк/кг), Th²³² (70,56 Бк/кг). По нашему мнению, такая закономерность с большей вероятностью связана со сложными эндогенными и экзогенными процессами, происходящими в Даш-Салахлинском месторождении бентонитовых глин.

Заключение

На основе проведенного гамма-спектрометрического анализа исследуемых образцов бентонитовой глины Даш-Салахлинского месторождения выявлено, что относительно аномальными по уровню радиоактивности являются образцы 4 и 5 пробы. Их уровень радиоактивности, который значительно превышает уровень естественного радиационного фона, представляет определенную радиологическую опасность на поверхности выше указанного месторождения, где были взяты пробы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Лисицын, А.К. Экзогенные урановые месторождения — возможные места захоронения радиоактивных отходов / А.К. Лисицын // Литология и полезные ископаемые. — 1994. — № 6. — С. 89–100.
2. Федынский, В.В. Разведочная геофизика / В.В. Федынский. — М.: Недра, 1967. — 672 с.
3. Печерин, В.Н. Определение радиоактивных свойств горных пород, 2-е изд. исправ. / В.Н. Печерин, Н.П. Демченко. — Ухта: УГТУ, 2014. — 43 с.
4. Савоненков, В.Г. Изучение природных аналогов для захоронения долгоживущих радиоактивных отходов / В.Г. Савоненков, Е.Б. Андерсон, Б.Е. Бураков и др. // Вопросы радиационной безопасности. — 1998. — № 3. — С. 23–34.
5. Шванов, В.Н. Систематика и классификация осадочных пород и их аналогов / В.Н. Шванов, В.Т. Фролов, Э.И. Сергеева и др. — СПб.: Недра, 1998. — 352 с.
6. Савоненков, В.Г. Глины как геологическая среда для изоляции радиоактивных отходов / В.Г. Савоненков, Е.Б. Андерсон, С.И. Шабалев. — СПб, 2012. — 215 с.
7. Ступин, Д.Ю. Загрязнение почв и новейшие технологии восстановления: Учеб. пособие / Д.Ю. Ступин. — СПб.: Лань, 2009. — 432 с.
8. Аллахвердиев, К.Р. Об особенностях и роли миграции радионуклидов в теплообменных процессах, происходящих в породах верхних слоев Земли и зонах Беньюфа / К.Р. Аллахвердиев, Э.А. Ахмедов // Elmi məcmuələr. — Cild 19. — № 2. — Bakı. — 2017. — Səh. 16–22.
9. Френкель, М.Я. О термодинамике, динамике и математическом моделировании геохимических систем / М.Я. Френкель // Геохимия. — 1992. — № 10. — С. 1401–1411.
10. Шарафутдинов, Р.Б. Геолого-геохимические захоронения радиоактивных отходов / Р.Б. Шарафутдинов, А.А. Строганов, А.Г. Левин и др. // Научные и технические аспекты окружающей среды. — ВИНТИ, 1999. — Вып. 5. — С. 2–87.
11. Rethinking High-level Radioactive Waste Disposal. Washington, D.C.: National Academy Press, 1990. — 38 p.
12. phus. rsu. ru/web|nuclear|radioekologie|fRE6.htm.
13. Concepts and Examples of Safety Analyse for Radioactive Waste Repositories in Continental Geological Formations: IAEA Safety Ser. — № 58. — 1983.
14. <http://www.bentonit.ru/ru/production/deposits/> ООО «Компания Bentonit». Месторождения.
15. <https://3minut.ru/images/PDF/2018/42vyvayvenie.pdf>.

© Аллахвердиев К.Р., Ахмедов Э.А., Гумбатов Ф.Ю., 2019
 Аллахвердиев Керим Рагим оглы // kerim.allahverdi@gmail.com
 Ахмедов Эйнуур Аждар оглы // eynur1957@mail.ru
 Гумбатов Фамиль Юсиф оглы // hfamil@mail.ru