

**Институт ядерной физики  
Национального ядерного центра Республики Казахстан**



**ICNRP'11**

*8-я международная конференция*

**ЯДЕРНАЯ И РАДИАЦИОННАЯ ФИЗИКА  
20-23 сентября 2011 г., Алматы, Казахстан**

**ДОКЛАДЫ**

*8<sup>th</sup> International Conference*

**NUCLEAR AND RADIATION PHYSICS  
September 20-23, 2011, Almaty, Kazakhstan**

**REPORTS**

**Алматы - 2011**

**УДК 539.1  
ББК 22.383  
Я 34**

**Ответственный редактор  
Доктор физ.-мат. наук, профессор  
К.К. Кадыржанов**

**ЯДЕРНАЯ И РАДИАЦИОННАЯ ФИЗИКА:**  
Материалы 8-ой международной конференции, 20-23 сентября  
2011 г., Алматы: ИЯФ НЯЦ РК, 2011, 571 с.

**ISBN 9965-675-78-3**

**УДК 539.1  
ББК 22.383**

ISBN 9965-675-78-3

© Институт ядерной физики НЯЦ РК, 2011

## **INTERNATIONAL ADVISORY BOARD**

**Chairman:** Dzhaksaliyev B.M. (Kazakhstan)

**Vice- chairman:** Batyrbekov E.G. (Kazakhstan)

### **Members:**

Abderrahim H.A. (Belgium), Alper Z. (Turkey), Betak E. (Slovakia), Garner F.A. (USA), Gray P.H. (UK), Hecker S.S. (USA), Marouf H. (IDB), Morimoto H. (Japan), Nagy D.L. (Hungary), Peterson L.E. (USA), Proehl G. (Austria), Rusek K. (Poland), Suzuki A. (Japan), Zerbo L. (CTBTO), Abdraimov B.Zh. (Kazakhstan), Adilov Zh.M. (Kazakhstan), Voevodin V.N. (Ukraine), Gridnev K.A. (Russia), Zhantikin T.M.(Kazakhstan), Izrael Yu.A. (Russia), Itkis M. G. (JINR), Kashparov V. (Ukraine), Kerimov M.K. (Azerbaijan), Kodina G.E. (Russia), Komarov F.F. (Byelorussia), Korshennikov A.A. (Russia), Kulipanov G.N. (Russia), Mamraev B.B. (Kazakhstan), Matveyev V.A. (Russia), Mirsaidov U. (Tajikistan), Mutanov G.M. (Kazakhstan), Neklyudov I.M. (Ukraine), Oganessian Yu.Ts. (JINR), Psahye S.G. (Russia), Tsitskishvili M.S.(Georgia), Shkolnik V.S. (Kazakhstan), Yuldashev B.S. (Uzbekistan)

## **ORGANIZATIONAL COMMITTEE**

**Chairman:** K.K. Kadyrzhanov (Kazakhstan)

### **Members:**

Lambert J.D.B. (USA), Lennartz R. (Germany), Miglierini M. (Slovakia), Salbu B. (Norway), Trosman G. (USA), Abramovich S.N. (Russia), Aliyev B.A. (Kazakhstan), Batyrbekov G.A. (Kazakhstan), Belyashova N.N. (Kazakhstan), Borisenko A.N. (Kazakhstan), Burtebayev N. (Kazakhstan), Garibov A.A. (Azerbaijan), Gerasimenko N.N. (Russia), Dmitriev S.N. (Russia), Dragunov Yu.G. (Russia), Dubassov Yu.V. (Russia), Zhotabayev Zh.R. (Kazakhstan), Koval N.N. (Russia), Kenzhin Ye.A. (Kazakhstan), Kussainov A.T. (Kazakhstan), Lukashenko S.N. (Kazakhstan), Panin M.S. (Kazakhstan), Remnev G.Ye. (Russia), Rudchik A.T. (Ukraine), Rusakov V.S. (Russia), Sakuta S.B. (Russia), Salikhibayev U. S. (Uzbekistan), Tazhibayeva I.L. (Kazakhstan), Uglov V.V. (Belorussia), Shamardin V.K. (Russia), Sharipov M.B. (Kazakhstan), Chakrov P.V. (Kazakhstan), Yarmukhamedov R.Ya. (Uzbekistan)

## ***CONFERENCE ORGANIZERS***

Ministry of Industry and New Technologies RK  
Ministry of Education and Science RK  
Kazakhstan Atomic Energy Committee  
National Nuclear Center RK  
Institute of Nuclear Physics NNC RK  
Institute of Atomic Energy NNC RK  
Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK

***Уважаемые участники и гости международной конференции  
«Ядерная и радиационная физика»!***

От имени Министерства индустрии и новых технологий Республики Казахстан, Международного консультативного совета и Организационного комитета приветствую Вас на традиционной 8-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика». Конференция посвящена знаменательному событию нашей страны – 20-летию независимости Республики Казахстан.

Ведущие ученые из 18 стран планируют обсудить широкий диапазон актуальных вопросов в области атомной энергетики, ядерной и радиационной физики, физики твердого тела, радиационной экологии, применения ядерно-физических и радиационных методов в медицине и промышленности, нераспространения ядерных и радиоактивных материалов. В работе конференции будут рассмотрены вопросы образовательных технологий и подготовки специалистов для атомной отрасли Казахстана.

Правительством Республики Казахстан утверждена Программа развития атомной отрасли, которая позволит создать основы атомной энергетики, развить ядерные и сопутствующие технологии, а также позволит решить комплекс задач по ядерно-физическим методам исследований, материаловедческим и экологическим проблемам, обеспечению режима нераспространения, противодействия незаконному обороту ядерных и радиоактивных материалов.

Ученые и специалисты Национального ядерного центра Республики Казахстан имеют долгосрочные и крепкие связи со многими научными центрами Западной и Восточной Европы, США, России, Японии, а также с учеными из тюрко-язычных, арабских и исламских государств. Необходимо принять во внимание всю важность данной конференции для усиления научных контактов между странами и отметить значительное расширение географии конференции.

Всем участникам желаю плодотворных научных обсуждений и интересных встреч во время работы конференции.

**ВИЦЕ-МИНИСТР ИНДУСТРИИ И  
НОВЫХ ТЕХНОЛОГИЙ РК**



**Б.М.ДЖАКСАЛИЕВ**



*Dear participants and guests of the International Conference  
"Nuclear and Radiation Physics"!*

On behalf of the Ministry of Industry and New Technologies of the Republic of Kazakhstan, the International Advisory Board and the Organizing Committee I welcome you to the traditional 8th International Conference "Nuclear and Radiation Physics." The conference is devoted to significant event in our country - the 20th anniversary of Independence of the Republic of Kazakhstan.

Leading scientists from 18 countries are expected to discuss a wide range of topical issues in nuclear energy, nuclear and radiation physics of solids, radiation ecology, the use of nuclear physics and radiation techniques in medicine and industry, non-proliferation of nuclear and radioactive materials. The conference will focus on educational technology and specialists training for the nuclear industry in Kazakhstan.

The Government of the Republic of Kazakhstan has approved a program of the nuclear industry development, which will allow to create the foundations of nuclear energy, to develop nuclear and related technologies, and will help to solve complex problems in nuclear-physical methods of research, materials science and environmental issues, ensuring non-proliferation, combating illicit trafficking of nuclear and radioactive materials.

Scientists and specialists of the National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan have long-term and strong relations with many research centers in Western and Eastern Europe, the USA, Russia, Japan, as well as with the scientists from the Turkic-speaking, Arab and Islamic countries. It should be taken into account the importance of this conference to strengthen the scientific contacts between the countries and it should be noted a significant geographic expansion of the conference.

I wish all the participants to have fruitful scientific discussions and interesting meetings during the conference.

**VICE-MINISTER OF INDUSTRY  
AND NEW TECHNOLOGIES RK**



**B.M.DZHAKSALIYEV**

**«Ядролық және радиациялық физика» халықаралық конференциясының құрметті қатысушылары мен қонақтары!**

Сіздерді Қазақстан Республикасының Индустрия және жаңа технологиялар министрлігі, Халықаралық консультациялық кеңес және Ұйымдастыру комитеті атынан «Ядролық және радиациялық физика» атты дәстүрлі 8-ші Халықаралық конференциясының ашылуымен құттықтаймын. Конференция біздің еліміздегі айрықша мәнді оқиға – Қазақстан Республикасы тәуелсіздігінің 20-жылдығына арналған.

18 елдің жетекші ғалымдары атомдық энергетика, ядролық және радиациялық физика, қатты денелер физикасы, радиациялық экология салаларындағы, медицина мен өнеркәсіптегі ядролық-физикалық және радиациялық әдістерін қолданудың, ядролық және радиактивтік материалдардың таралмауының кең ауқымды көкейкесті мәселелерін талқылауды жоспарлауда. Конференция жұмысында Қазақстандағы атом саласы үшін білім технологиялары мен мамандарды даярлау мәселері де қарастырылады.

Қазақстан Республикасының Үкіметі атом саласын дамыту Бағдарламасын бекітті, ол атом энергетикасының негізін қалауға, ядролық және жанама технологияларды дамытуға мүмкіндік береді, сонымен қатар ядролық-физикалық, материалтану және экологиялық мәселелерді кешенді түрде шешуге, ядролық және радиактивті материалдардың таралмауын, заңсыз айналымына қарсы әрекеттің режимін қамтамасыз етуге мүмкіндік береді.

Қазақстан Республикасының Ұлттық ядролық орталығының ғалымдары мен мамандарының Батыс және Шығыс Еуропаның, АҚШ-тың, Ресейдің, Жапонияның көптеген ғылыми орталықтарымен, сонымен бірге түркі-тілдес, араб және ислам мемлекеттерінің ғалымдарымен ұзақ мерзімді және берік байланыста. Елдер арасындағы ғылыми байланыстарды күшейтуге арналған осы конференцияның барлық маңыздылығы ескере отырып, конференция географиясының түбегейлі кеңейуін атап өту қажет.

Конференцияның жұмысы кезінде барлық қатысушыларға жемісті ғылыми талқылаулар мен қызықты кездесулер тілеймін.

**ҚР ИНДУСТРИЯ ЖӘНЕ ЖАҢА  
ТЕХНОЛОГИЯЛАР ВИЦЕ-МИНИСТІРІ**



**Б.М. ЖАҚСАЛИЕВ**

## ОТ ОРГКОМИТЕТА КОНФЕРЕНЦИИ

Восьмая Международная конференция «Ядерная и радиационная физика», посвященная 20-летию независимости Республики Казахстан, состоялась 20-23 сентября 2011 г. в г. Алматы, Республика Казахстан.

Конференция была организована Министерством индустрии и новых технологий РК, Министерством образования и науки РК, Комитетом атомной энергии РК, Национальным ядерным центром РК, Институтом ядерной физики НЯЦ РК, Институтом атомной энергии НЯЦ РК, Институтом радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК.

Научная тематика конференции состояла из следующих разделов:

### 1. Атомная энергетика

- Современные проекты АЭС
- Энергетика будущего, инновационные реакторы
- Радиационное материаловедение и физика твердого тела, конструкционные материалы и ядерное топливо
- Безопасность атомной энергетики

### 2. Ядерная физика

- Механизмы ядерных реакций и структура ядер
- Сверхтяжелые элементы: синтез и деление
- Ядерная физика низких и средних энергий, ядерная астрофизика и термоядерный синтез

### 3. Радиационная экология

- Радиозонологические исследования бывших испытательных полигонов и других радиационно-опасных объектов, оценка рисков
- Технологии снижения радиозонологического риска радиационно-опасных объектов и территорий, обращение с радиоактивными отходами
- Физико-химические методы в радиозонологии и вопросы дозиметрии

### 4. Ядерные и радиационные методы в медицине и промышленности

- Производство и применение радиоактивных изотопов
- Ядерная медицина
- Радиационные технологии
- Новые материалы и методы их получения, наноматериалы

### 5. Проблемы нераспространения

- Мониторинг ядерных испытаний
- Ликвидация инфраструктуры ядерных испытаний
- Противодействие незаконному обороту ядерных и радиоактивных материалов, минимизация использования высокообогащенного урана.

### 6. Образовательные технологии и подготовка кадров

В работе конференции приняли участие более 250 ученых и специалистов из 19 стран мира: Австрия (2), Азербайджан (3), Армения (1), Бельгия (1), Германия (5), Египет (2), Казахстан (149), Киргизия (4), Корея (1), Россия (58), США (5), Турция (2), Узбекистан (12), Япония (12) и других стран.

В работе конференции также приняли активное участие представители научных институтов, организаций и центров: Национальная Лаборатория Айдахо, Аргонская Национальная Лаборатория, Тихоокеанская Национальная лаборатория (США), Японское Агентство Атомной Энергии, Корейский Исследовательский Институт Атомной Энергии, Объединенный институт ядерных исследований (Дубна, Россия), Федеральное государственное унитарное предприятие «Горно-химический комбинат» (Железногорск, Россия), Институт математики и механики (Свердловск, Россия), Открытое акционерное общество «ОКБМ» (Нижний Новгород, Россия) и др. Казахстанские ученые представляли ведущие научные центры и Вузы Республики.

В программу 8-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика» были включены доклады, в которых были представлены достижения и перспективы развития мировой атомной науки и техники, ее безопасность и надежность; фундаментальные аспекты ядерной физики; радиозонологические исследования бывших испытательных полигонов; проблемы производства и применения радиоактивных изотопов; проблемы нераспространения ядерных материалов; вопросы образовательных технологий и подготовки специалистов и многие другие научные вопросы.

Международный консультативный совет и Организационный комитет выражает свою благодарность всем участникам конференции за представленные новые научные результаты и возможность обсудить дальнейшее научное сотрудничество специалистов из разных стран.

Председатель Организационного комитета  
Генеральный директор НЯЦ РК



К.К.КАДЫРЖАНОВ

**DEFINITION OF RATE CONSTANTS OF HYDROGEN ISOTOPES INTERACTION WITH LITHIUM CPS**

<sup>1</sup>Gordienko Yu.N., <sup>1</sup>Sadvakassova A.O., <sup>1</sup>Tazhibayeva I.L., <sup>1</sup>Kenzhin E.A., <sup>1</sup>Kulsartov T.V.,  
<sup>1</sup>Ponkratov Yu.V., <sup>1</sup>Tulubaev Ye.Yu., <sup>1</sup>Barsukov N.I., <sup>2</sup>Kulsartova A.V.  
<sup>1</sup>*Institute of Atomic Energy of National Nuclear Center RK, Kurchatov, Kazakhstan,*  
<sup>2</sup>*Nuclear Technology Safety Center, Almaty, Kazakhstan.*

**1. Introduction**

Currently the activities on creation of Kazakhstani Tokamak for Material testing (KTM) are carried out in Kazakhstan. The main goal of the tokamak is realization of the studies in justification of design and materials of power fusion reactors [1,2].

The issues of degradation and destruction of plasma-facing materials, tritium accumulation, and plasma contamination can be solved by using liquid metals of low Z number. Lithium is the best candidate as a plasma-facility material of receiving divertor tiles and other intra-chamber components. One of research goals of tokamak KTM is to study potentials of new material on the basis lithium capillary-porous systems (CPS) to protect intra-chamber power-strained components of fusion reactors.

Presently the works on creation a module of lithium divertor (MLD) are carried out jointly with Russian specialists [3, 4]. The module is created on the basis of lithium CPS with stainless steel and tungsten felt. MLD will replace one of 24 graphite tiles of the KTM divertor.

The main goal of work is to assess parameters of hydrogen isotopes interaction with Li-CPS under conditions modeling the operation modes of the tokamak KTM to regulate pre-start modes of working gases' input.

**2. Experimental Part**

**2.1 Sample and Lithium Filling Technique**

Stainless steel net made from 12Cr18Ni10Ti was used for fabrication of a sample's matrix; thickness of the net is 100 μm; cell is about 100 μm. Eight identical squares of 10×10 mm were cut from the stainless steel (SS) net. 30-mm wick (10 fragments of SS wire, 0.1 mm thickness) was fastened through a hole to a 12Cr18Ni10Ti base. Net squares were placed at the base and fastened with the clips, so a mat of 30-40% porosity was made (see Fig. 1a). CPS matrix was placed and fastened to a bottom of experimental device (Fig. 1b). A wick intended for filling the CPS matrix with liquid lithium (due to capillary forces) was connected with a lithium feeding tract. All three units of the experimental device were welded by using argon-arch welding.



Figure 1. CPS Components:

a) ready-assembled CPS with wick; b) CPS placed at the experimental device before welding

Vacuum filling of the sample's matrix with liquid lithium was carried out after final mounting and standard leakproofness check of the experimental device (Fig. 2).

Procedure for filling the CPS with lithium was realized as follows: the experimental device, which was preliminary annealed, was filled with 3 g of metal lithium; then in accordance with developed procedure, CPS model and this device were annealed during 2 hours at temperature of 700oC under conditions of high-vacuum oil free pumping out. The annealing was required for lithium degassing and cleaning from lithium hydride, which melting temperature is 692±2°C. Heating of the CPS model allowed for matrix cleaning from oxide films as well. During the annealing process, lithium was not supplied into filling tract of the sample, since position of a container with lithium was lower then position of the wick. After preparation activities the CPS model was filled with lithium; then vessel with lithium was heated up to 400oC; lithium feeding tract was heated up to 350°C. After that, CPS model was filled with lithium through the wick due to capillary forces. The filling process was visually observed through a watch window, which was located at the top of the experimental device; it allowed to control full loading of all the volume of CPS with liquid lithium.

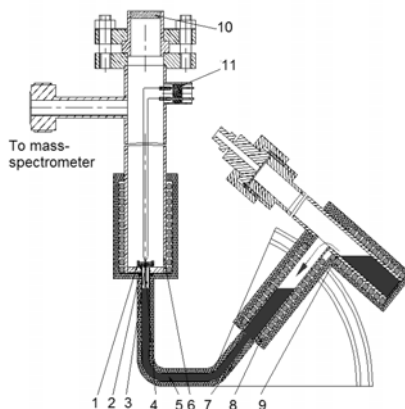


Figure 2. Experimental Device Scheme: 1 – fastenings; 2 – CPS; 3 – thermocouples; 4 – wick; 5 – liquid lithium; 6 – chamber vessel; 7 – heat insulation; 8 – heaters; 9 – lithium vessel; 10 – watch window; 11 – sealed output for thermocouples

## 2.2 Experimental facility

The experiments to study hydrogen isotope interaction with lithium CPS were carried out at the modernized facility VIKA. Principal scheme of the facility is given in Fig. 3. The facility VIKA includes:

1. Vacuum tracts and fittings providing for two-step vacuum pumping of the experimental device: for-vacuum one on the basis of the pump 2NVR-5DM and high-vacuum oil-free on the basis of the pump NORD-250;
2. A device containing lithium CPS;
3. Hydrogen/deuterium feeding system on the basis of diffusion palladium-silver filter;
4. Measurement system consisting of pressure meters and two mass-spectrometers (quadruple mass-spectrometer RGA-100 and omegatron mass-spectrometer on the basis of RMO-13).

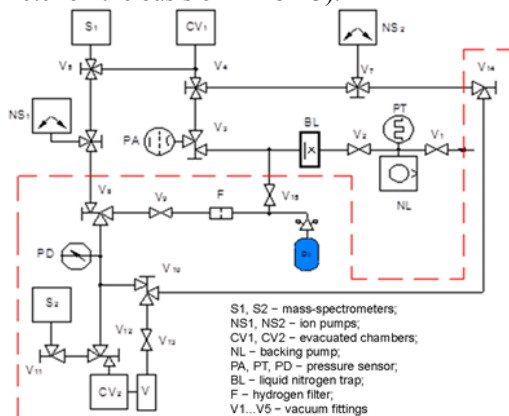


Figure 3. Principal scheme of modernized facility VIKA

The experimental procedure was as follows: gas was fed to lithium CPS chamber at a given temperature, and then gas pressure kinetics in a chamber was measured. During the experiments gas concentration in a saturation chamber was controlled as well.

Experimental conditions were as follows:

- Hydrogen isotopes H<sub>2</sub>, D<sub>2</sub>;
- Temperature range 200 – 350°C;
- Input pressure of hydrogen isotopes 100 – 550 Pa;
- Calibration leak from atmosphere 1.192·10<sup>-10</sup> mole/s.

## 3. Experimental results

*First stage of the experiments* was aimed to assess the effects of atmosphere gases on the parameters of hydrogen interaction with lithium CPS. As a result the time dependencies were obtained for hydrogen pressure over a sample under various vacuum conditions (with and without leak of atmosphere gases through a calibration hole). Lithium CPS temperature was 200°C. Initial pressure in the experimental device was 100 Pa (see Fig. 4) and pressure during experiment was 100 – 550 Pa (see Fig. 5).

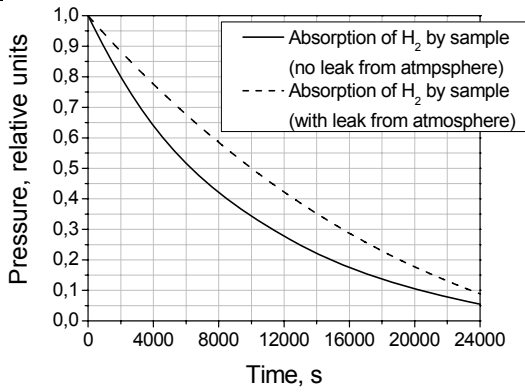


Figure 4. Normalized curve of changes in hydrogen pressure inside experimental devices under sample's temperature of 200°C

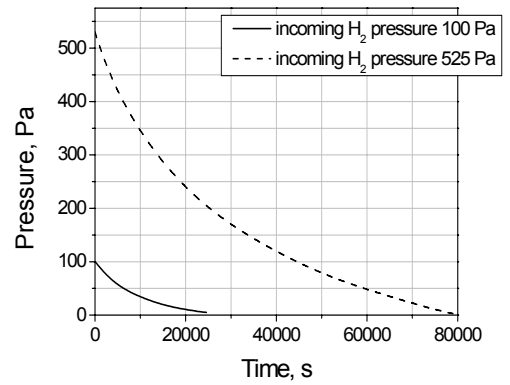


Figure 5. Changes in hydrogen pressure inside the experimental device under sample's temperature of 200°C

Figure 4 shows that hydrogen absorption rate was lower when there was leakage of atmosphere gases. Figure 5 shows hydrogen absorption by a sample under various initial pressures in the experimental device. Figure 6 shows mass-spectra of residual gases in the chamber under CPS temperatures in the range from 20 to 250 °C. Presence of lithium CPS in the vacuum chamber significantly decreased partial pressures of residual gases.

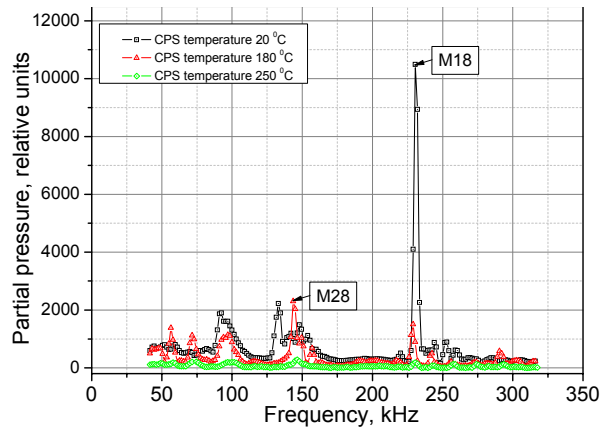


Figure 6. Mass-spectra for various temperatures of CPS sample in vacuum chamber

### 3.1 Experiments on determination of sorption properties of lithium CPS against atmosphere gases

Additional experiment was realized to correctly assess the effects of the atmosphere gases on the parameters of hydrogen isotope interaction with lithium CPS. As a result we received time dependence of pressure changes in the experimental device; sample's temperature was 20 °C at the initial stage (see Fig. 7) and 200°C during sorption (Fig. 8). We obtained the gas spectra in the chamber under leakage/ no leakage conditions. During leakage experiments gas composition in a chamber was determined for lithium CPS temperature of 200°C.

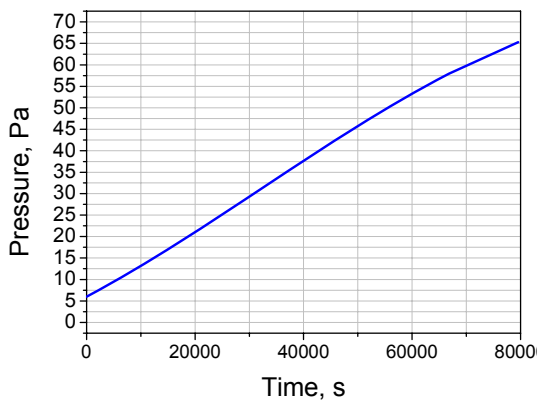


Figure 7. Leak of atmosphere gases into experimental device through calibration hole

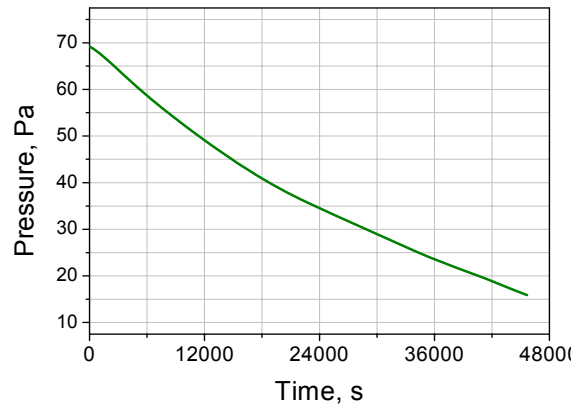


Figure 8. Changes in pressure of atmosphere gases in experimental device under CPS temperature of 200°C

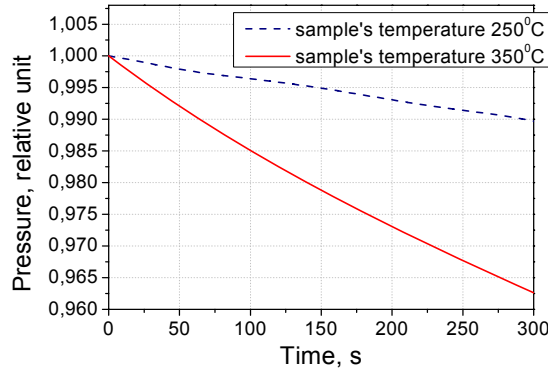


Figure 9. Normalized graph of deuterium pressure changes in the experimental device taking into account leaking of atmosphere gases

There were carried out the experiments with deuterium under leakage of atmosphere gases as well; sample's temperature was 250 and 350°C. Initial pressure of deuterium was 450 – 520 Pa. Normalized time dependence of deuterium pressure is given in Figure 9.

### 3.2 Determination of parameters of hydrogen isotope interaction with lithium CPS

Rates of hydrogen isotope interaction were calculated by using the experimental curves. The calculations were carried out as follows.

For no leakage experiments we used the graph given in Fig. 4. Constant  $k$  of hydrogen isotope interaction with lithium CPS was calculated by using equation (1) and ideal gas relation.

$$k = - \frac{dV}{dt} \cdot \frac{1}{S_{cps} \cdot P(t)} = - \frac{\frac{dP(t)}{dt}}{P(t)} \cdot \frac{V}{R \cdot T \cdot S_{cps}} \quad (1)$$

where  $dV$  – moles of gas interacted with lithium CPS during time  $dt$ ,  $V$ - volume of the experimental device with lithium CPS;  $R$  – universal gas constant;  $T$  – gas temperature;  $P$  – gas pressure in the experimental device;  $P'$  – rate of changes in gas pressure in the experimental device;  $S_{cps}$  – square of lithium CPS surface.

To determine constants of hydrogen isotopes interaction with lithium CPS under leakage of atmosphere gases the following calculations were carried out:

At first stage leaking rate of atmosphere gases was calculated by using a graph (see Fig. 7) and equation (2):

$$V_{leak} = \frac{dV_{leak}}{dt} = \frac{\frac{dP(t)}{dt} \cdot V}{R \cdot T} \quad (2)$$

$V_{leak}$  – number of atmosphere gas leaked into chamber during time  $dt$ .

Then equations (3), (4) and (5) were used for calculation of a constant of atmosphere gases interaction with lithium CPS (sample temperature –200°C).

$$k_{atm} = \left( \frac{dV_s}{dt} + \frac{dV_{leak}}{dt} \right) \cdot \frac{1}{S_{cps} \cdot P(t)} = - \frac{\left( \frac{dP(t)}{dt} + f \right)}{P(t)} \cdot \frac{V}{R \cdot T \cdot S_{cps}} \quad (3)$$

where  $dV_s$  – changes in gas quantity in lithium CPS chamber during  $dt$ :

$$f = \frac{V_{leak} \cdot R \cdot T}{V} \quad (4)$$

Then we used equation (5) to calculate a constant of hydrogen isotope interaction with lithium CPS under leakage of atmosphere gases into the experimental device with a rate of  $1.2 \times 10^{-10}$  mole/s.

$$k_I = - \left( \frac{dV_s}{dt} - \frac{dV_{atm}}{dt} + \frac{dV_{leak}}{dt} \right) = - \left( \frac{\frac{dP(t)}{dt}}{P_I(t)} - \frac{k_{atm} \cdot (P(t) - P_I(t))}{P_I(t)} - \frac{V_{leak}}{P_I(t)} \right) \cdot \frac{1}{S_{cps}} \quad (5)$$

where  $dV_{leak}$  – changes (decrease due to sorption) of atmosphere gas concentration in a chamber with lithium CPS during time  $dt$ ,  $P_I(t)$  – pressure of hydrogen isotope in a chamber during saturation. All the calculations were realized taking into account registration error. The most reliable values of interactions constants were obtained when initial period of the experiments was about 250 –1000 s, and this error was 2% at the most. For greater times and lower pressures the error could be 45% and more. moreover, for initial sorption process, when  $P(t) \sim P_I(t)$ , equation (5) turns to equation (3).

Values of hydrogen/deuterium interaction constants calculated for initial areas of sorption curves are given in Table 1.

Table 1. Constants of hydrogen isotope interaction with lithium CPS

CPS Temperature	$K_I, P_0=100$ Pa, mole/(s·Pa·m <sup>2</sup> )	$K_I, P_0=100$ Pa, with leak mole/(s·Pa·m <sup>2</sup> )	$K_I, P_0=550$ Pa, with leak mole/(s·Pa·m <sup>2</sup> )	$k_D, P_0=550$ Pa, with leak mole/(s·Pa·m <sup>2</sup> )
200°C	1,68E-7	1,09E-7	0,96E-7	—
250°C	—	—	—	6,61E-8
350°C	—	—	—	1,34E-7



### Nuclear Energy

Constants of hydrogen interaction with lithium [5]	Lithium temperature, °C	520	485	455	200
	$k_{H_2}$ , mole/(s·Pa·m <sup>2</sup> )		(4,9E-6)	(4,4E-6)	(3,9E-6)

Using the temperature curve of the constant of deuterium interaction with lithium CPS we defined activation energy of interaction process – 19.23 kJ/mole. So deuterium constant is

$$k_D = 5,5 \cdot 10^{-7} \exp(-19.23/R \cdot T)$$

#### 4. Conclusion

Main parameters of hydrogen isotope interaction with lithium CPS were obtained as a result of the realized experiments. The effect of atmosphere gases leak (permissible leak of  $\sim 1,77 \cdot 10^{-12}$  Pa/(m<sup>3</sup>s)) on interaction rate of hydrogen isotopes with lithium CPS was registered: rate of hydrogen isotope sorption decreased and interaction constant was decreased in 1,5 times at least. This effect can be explained by an interaction of the atmosphere gases with liquid lithium and formation of poorly soluble films in lithium.

The obtained parameters of hydrogen isotope interaction with lithium CPS were used for calculation of a rate of deuterium (hydrogen) supply into KTM chamber during pre-start mode.

The plan for future work will be investigation of neutron irradiation influence on parameters of hydrogen isotopes interaction with Li-CPS, as well as 3T and 4He generation and release under neutron irradiation.

#### 5. References

- [1] E.A. Azizov, V.N. Dokuka, V. Shestakov, V. Shkolnik, I. Tazibayeva, E. Velikhov and al., Kazakhstan Tokamak for Material Testing, Plasma Devices and Operations, v.11(1) (2003) 39-55.
- [2] E.A. Azizov, V. Shkolnik, I. Tazibayeva, E. Velikhov and al., Kazakhstan Tokamak for Material Testing KTM and Controlled Fusion Issues, first ed., Glory, Almaty, 2006.
- [3] I.Tazhibayeva, I.Lublinski, A.Vertkov, V.Lazarev, A.Azizov, G. Mazzitelli, P. Agostini, Mock-up divertor of KTM tokamak on the base of lithium CPS, abstract for 19 ANS Technical Meeting on technology of fusion energy, TOFE-19, Las Vegas, 8-11 November, 2010, CA, USA, 93.
- [4] I. Lyublinski, M.L. Apicella, E. Azizov, V. Balakirev, V. Evtikhin D. Ionov, G. Mazzitelli, S. Mirnov, I. Tazhibayeva, A. Vertkov, Main Results and Prospects of Lithium Capillary-Porous System Investigation as Tokamak Plasma Facing Material, 22-nd IAEA Fusion Energy Conference, 13-18 October, Geneva, 2008, Book of Abstracts, 121.
- [5] Gardner M. P., Altermatt R. E., Kinetics of the Reaction of Hydrogen and Nitrogen with molten Lithium, Lithium. Current Applications in Science, Medicine, and Technology, Ed. R. O. Bach. N.Y., 1985.

### PECULIARITIES OF DEFECT FORMATION IN BARIUM AND STRONTIUM CERATES UNDER REACTOR IRRADIATION

Khromushin I.V., Aksanova T.I., Zhotabaev Z.R., Munasbaeva K.K.  
*Institute of Nuclear Physics, National Nuclear Center of RK, Almaty 050032 Kazakhstan*

*The effect of reactor irradiation on the structure and properties of barium cerates was studied by the thermal desorption and Fourier transform-infrared (FT-IR) spectroscopy. It was shown that irradiation of these materials at temperature about 100°C leads to additional desorption of oxygen, water and carbon dioxide molecules from oxides and the amount of desorbed gases increases with increasing of radiation dose. In the FT-IR spectrums of irradiated cerates the increase of absorption intensity can be observed in the range of 3300-3600 cm<sup>-1</sup>, caused by stretching vibrations of OH groups, as well as the appearance of additional absorption bands in the range of 1020-1040 cm<sup>-1</sup>. It is assumed that formation of oxygen vacancies accompanied by the reduction of Ce<sup>4+</sup> to Ce<sup>3+</sup> takes place during irradiation. Possible mechanism of the reduction is discussed. It was noticed the hydroxide formation on the surface of barium cerates during irradiation.*

#### 1. Introduction

Complex oxides with the perovskite structures are very interesting both from the scientific and applied points of view because of their unique properties such as high temperature protonic conductivity [1], for example. This makes it possible to use them in hydrogen fuel cells for energy production. Also high temperature proton conducting oxides can be used in a number of applications for nuclear industry including hydrogen isotope separation devices, hydrogen sensors and others [2].

The typical representatives of solid oxide proton conductors are barium and strontium cerates. These materials are rather well investigated [3-9] and it is common accepted that they have maximum proton conductivity among similar materials, but at the same time, their chemical stability is low. Earlier much attention has been paid to fabrication of new chemical composition with high proton conductivity and stability. It is necessary to find the new ways of high performance proton conductor's fabrication.

It has been reported that ion irradiation is a promising method for surface modification to promote the electrical, optical and other properties of materials [10-11]. So, it is important to obtain knowledge about influence of radiation on structure and properties of the perovskite type ceramics.



The results of our previous research on gas-proton conductor exchange processes have been reported in [12-14]. This paper reports recent progress in the investigation of the influence of reactor irradiation on the structure and properties of barium cerates. It is considered that this type of irradiation brings to the modification of both surface and bulk oxide properties.

## 2. Experimental

Samples of BaCeO<sub>3</sub> doped with neodymium were fabricated by solid-state reaction technology with various doping level  $x = 1 - 15 \%$ . The synthesized samples have the perovskite structure and density  $\sim 5 \text{ g/cm}^3$ . The ceramics were cut into bars of 5x4x1 mm size and annealed in air at 650°C for 7 hours. Then samples were hermetically sealed in glass ampoules, containing atmospheric air, and irradiated at 100 °C in ‘wet’ channel of the WWR-K reactor of the Institute of Nuclear Physics RK to achieve different irradiation doses. Irradiation in the “wet” channel is carried out in a special aluminum case, which houses the ampoules with the irradiated samples. During irradiation the case is washed with water. Water is a coolant and a moderator for this type of reactor. Irradiation in the “wet” channel ensures that temperature of the samples during irradiation is less than 100 °C. Energy spectrum of neutrons at the irradiation place is specified in Table 1.

Table 1. Energy spectrum of neutrons

Energy range	< 0.465 eV	0.465 eV – 0.1 MeV	0.1– 1.0 MeV	> 1.0 MeV
Neutron flux (n/cm <sup>2</sup> s)	$3.2 \times 10^{13}$	$1.1 \times 10^{13}$	$5.1 \times 10^{12}$	$5.1 \times 10^{12}$

Gas thermodesorption and FT-IR spectroscopy were used to characterize these materials. These experimental methods allow us to determine the chemical composition of the desorbed gases, temperature range of gas desorption and the forms of proton localization.

The experimental setup used for gas thermodesorption studies is depicted schematically in Fig. 1. This setup allowed measuring the partial pressure of gases in the working chamber during heating at a known ramp rate.

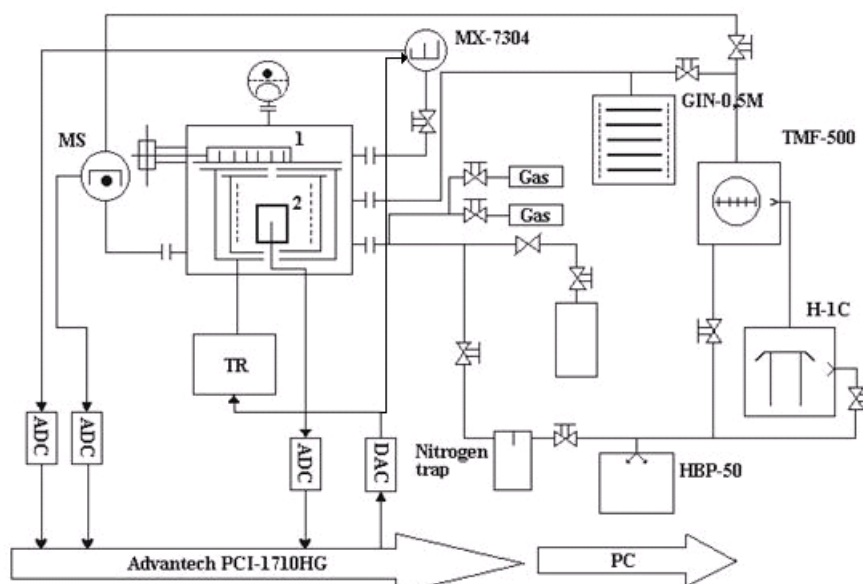


Fig.1. Schematic of the device used for gas thermodesorption measurements: 1 - cell for samples; 2 – heater; MX-7304 – radio frequency mass-spectrometer; MS – static mass-spectrometer; TR – high current temperature regulator; PC – personal computer.

To achieve an acceptable vacuum ( $\sim 10^{-5}$  Pa) the entire vacuum system, including the vacuum chamber, was heated to 300 °C prior to the experimental program. During the system baking-out, the samples were placed in a cooler part of the chamber which was maintained at approximately 25°C by circulating cooling water. The temperature of the samples was measured using a W-Re thermocouple placed on the bottom of the heating cup. The samples (up to 7 in total) were successively placed in the heating cup and thermodesorption spectrums of the gases of interest were measured.

A personal computer with an Advantech PCI-1710HG card was used to control sample heating, selection of gas masses to be monitored, temperature and thermodesorption spectrum measurement. This automation scheme allows measuring simultaneously up to 6 desorption spectra of different gases. The samples heating rate was 42 K/min in all cases.

FT- IR spectra were measured with Japan IA-Prestige-21 Fourier IR spectrometer in the frequency range from 380 to 4000  $\text{cm}^{-1}$  at room temperature. For FT-IR study the samples were grinded with KBr and pressed into bars of 10x30 mm size.

## 3. Results and discussion

Desorption spectra of oxygen and water molecule release from Nd-doped ceramic barium cerate samples, irradiated in the reactor to different doses at 100°C, are shown in Fig. 2 (a), 2 (b). It can be seen that the amount of desorbed oxygen molecules increases with irradiation dose.

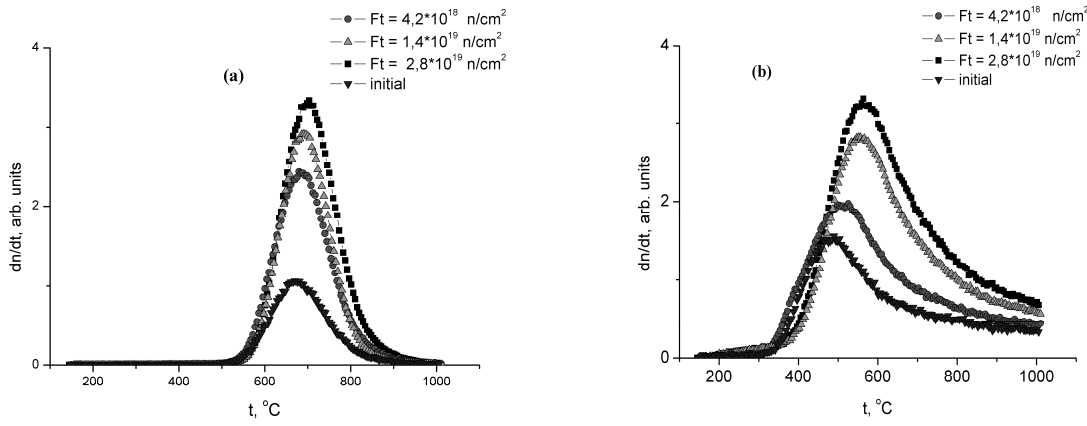


Fig.2. Dose dependence of (a) O<sub>2</sub> desorption and (b) H<sub>2</sub>O desorption from ceramic BaCe<sub>0.9</sub>Nd<sub>0.1</sub>O<sub>3-δ</sub>.

In our previous work it has been shown that amount of oxygen molecules desorbed from barium cerates increases with their doping level [15]. Temperature of the desorption rate maximum of oxygen molecules does not depend both on irradiation dose and doping level. So influence of the reactor irradiation and the doping level on desorption of oxygen molecules from barium cerates is similar.

It is necessary to notice that actual oxygen stoichiometry of doped barium cerates is higher than expected one [16]. We consider that this nonstoichiometric oxygen is weaker bonded in oxide lattice in comparison with host oxygen and is responsible for oxygen desorption taking place at ~700 °C.

It is interesting that no oxygen release was found from irradiated and unirradiated doped and undoped strontium cerates [12, 17]. We consider that nonstoichiometric oxygen in doped barium cerates is the reason of their mixed proton-oxygen type of conductivity. At the same time doped strontium cerates are pure proton conductors and no oxygen release from these samples was found even after reactor irradiation.

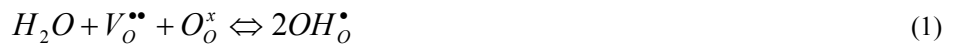
It can be seen from Fig. 2 (b) that amount of desorbed water molecules also increases with increasing of irradiation dose. The desorption rate maximum of water molecules is shifted to higher temperature side with increasing dose.

Earlier it has been shown that increase of doping level brings to increase of desorbed water molecule amount and to the shift of the desorption rate maximum to the high temperature side [15]. According to the literature data the higher the doping level of barium cerates the more water remains in the lattice at high temperatures and the higher temperature of dehydration beginning [7]. This is in good agreement with our results.

It is necessary to notice that all changes in oxygen and water molecule desorption processes from irradiated barium cerates caused by irradiation not by kinetics of gas – solid exchange processes during irradiation at 100 °C. It was confirmed by measuring of oxygen and water molecule desorption from unirradiated barium cerates annealed in the sealed glass ampoules, containing atmospheric air at 100°C, i.e. in conditions similar to irradiation conditions.

Taking into account the above mentioned facts we came to the conclusion that the effect of irradiation on barium cerates is similar to the doping effect.

It is known that doping of barium cerate with rare earth elements R<sup>3+</sup> gives rise to substitutional defects R'<sub>Ce</sub> and positively charged oxygen vacancies V<sub>O</sub><sup>••</sup>. In the sequel the formed oxygen vacancies can be filled by hydroxyl groups from surrounding atmosphere by standard scheme [18]:



Some vacancies can be filled with oxygen in case of barium cerates



The similarity of radiation and doping effects on barium cerates can be explained by reduction of Ce<sup>4+</sup> to Ce<sup>3+</sup> during irradiation. So ionizing radiation forms the radiation defects in the lattice of ABO<sub>3</sub> perovskite, which are annealed, in general, after sample heating. The exception, in our opinion, is the defects, associated with reduction of Ce<sup>4+</sup> to Ce<sup>3+</sup> upon irradiation. The mechanism of these defects formation appears to be as follows. Displacement of oxygen ion from lattice sites, caused by irradiation, results in significant dynamic increase of lattice energy due to formation of vacancy with an effective charge +2 and interstitial oxygen ion. The lifetime of such Frenkel pairs in closely packed perovskite lattice should be extremely low, and oxygen, knocked out of the lattice, is almost immediately drained, or recombines with the vacancy. However, for a short lifetime of Frenkel pair, the lattice is trying to reduce its energy by reducing the valence of cerium down to 3+, creating visibility of these materials doping by low-valence cations. Formed oxygen vacancies are filled by hydroxyl groups and oxygen from ambient according with reactions (1) and (2) and it gives an additional release of water and oxygen molecules in thermodesorption spectrums. That is why the higher dose of reactor irradiation the higher amount of desorbed gas molecules from the oxides. It is necessary to notice that reduction of Ce<sup>4+</sup> to Ce<sup>3+</sup> at irradiation of the cerates by argon ions and electrons was found in papers [19, 20].

FT-IR study of the irradiated samples has shown that irradiation leads to increased absorption in the region of 3400 cm<sup>-1</sup> due to stretching vibrations of OH groups (Fig. 3 (b)). Besides, new absorption bands of 1020-1040 cm<sup>-1</sup> (Fig. 3 (a)), which are absent in the spectra of unirradiated cerates, appear. Absorption bands in this region are usually connected with bending

vibrations of OH-groups of metal hydroxides [21]. So it is assumed that these absorption bands are specified as OH-group bending vibrations of barium and cerium hydroxides. We consider that these hydroxides are formed on the topmost surface of irradiated samples at their contact with ambient during irradiation. It is necessary to notice that we failed to find any additional peak of water release related to the hydroxide decomposition in desorption spectrums perhaps due to high temperature of the decomposition. Formation of hydroxides was also observed in [20] during electrons irradiation of strontium cerate.

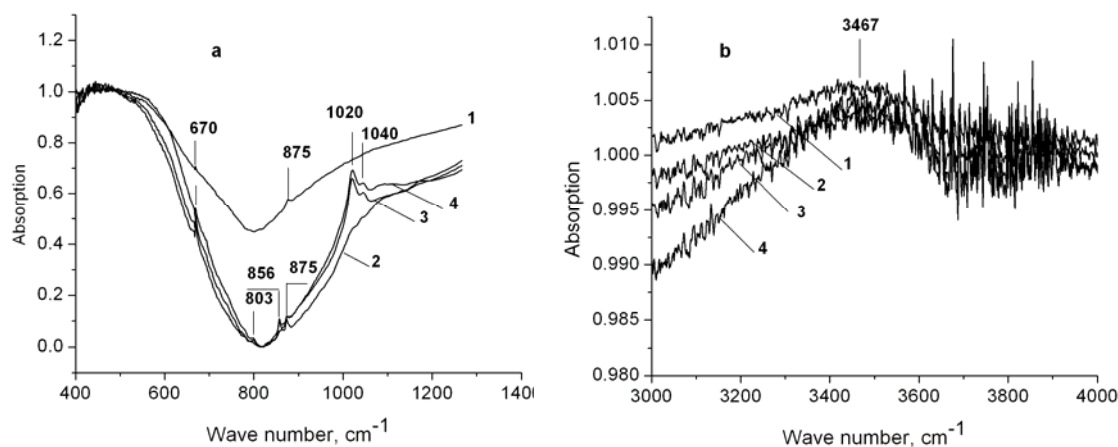


Fig.3. FT-IR spectra of  $BaCe_{1-x}Nd_xO_{3-x/2}$  irradiated to different fluencies: 1- unirradiated sample; 2 -  $Ft=4.2 \times 10^{18} \text{ n/cm}^2$ ; 3 -  $Ft=1.4 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ; 4  $Ft=2.8 \times 10^{19} \text{ n/cm}^2$ ; ( $x=15\%$ ).

It is necessary to notice that a significant increase in carbon dioxide release from these samples was observed with increasing of irradiation dose (Fig. 4). So we consider that irradiation of these materials stimulate their interaction with carbon dioxide from ambient and formation of carbonates in subsurface area.

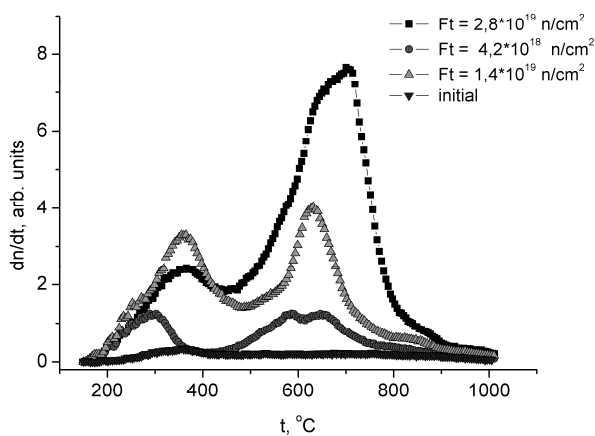


Fig.4. Dose dependence of  $CO_2$  desorption from ceramic  $BaCe_{0.9}Nd_{0.1}O_{3-\delta}$ .

According to literature data [22], carbonates can exist as uni- or bidentate structures. The bidentate carbonates are converted into a stronger unidentate carbonates. Unfortunately, the absorption band region of carbonate structures ( $1380\text{-}1500 \text{ cm}^{-1}$ ) overlaps the region of OH group bending vibrations, complicating data interpretation. Since the presence of carbonates in these materials leads to deterioration of oxide stability and conductivity, it is necessary to avoid contact of cerates with carbon oxides, especially during reactor irradiation.

#### 4. Conclusion

It is shown that irradiation of these materials at  $100 \text{ }^\circ\text{C}$  results in additional oxygen, water molecule release from the oxides. This fact is explained by formation of oxygen vacancies, accompanied by the reduction of  $Ce^{4+}$  to  $Ce^{3+}$  during irradiation. Possible mechanism of the reduction is discussed. It is appeared that the reactor irradiation of the oxides stimulate formation of carbonates and hydroxides in subsurface area.

#### References

1. H. Iwahara, H. Uchida, S. Tanaka, Appl. Electrochem. 16 (1986) 663-668.
2. T. Schober, Solid State Ionics 162-163 (2003) 277-281.
3. K.D. Kreuer, Th.Dippel, Yu.M. Baikov, J. Maier, Solid State Ionics 86-88 (1996) 613-620.
4. K.D. Kreuer, Solid State Ionics 97 (1997) 1-15.
5. K.D. Kreuer, Solid State Ionics 125 (1999) 285-302.

6. R. Glockner, M.S. Islam, T. Norby, *Solid State Ionics* 122 (1999) 145-156.
7. A. Kruth, J.T.S. Irvine, *Solid State Ionics* 162-163 (2003) 83-91.
8. R.J. Phillips, N. Bonanos, F.W. Poulsen, E.O. Ahlgeren, *Solid State Ionics* 125 (1999) 389-395.
9. F.W. Poulsen, *Journal of Solid State Chemistry* 143 (1999) 115-121.
10. Jae-Hwan Kim, Bun Tsuchiya, Shinji Nagata, Tasuo Shikama, *Solid State Ionics* 179 (2008) 1182-1186.
11. B. Tsuchiya, A. Morono, E.R. Hodgson, S. Nagata, T. Shikama, *Solid State Ionics* 179 (2008) 909-912.
12. T.I. Aksenova, I.V. Khromushin, Zh.R. Zhotabaev, K.D. Bukenov, A.K. Berdauletov, Z.V. Medvedeva, *Solid State Ionics* 162-163 (2003) 31-36.
13. I.V. Khromushin, T.I. Aksenova, Zh.R. Zhotabaev, *Solid State Ionics* 162-163 (2003) 37-40.
14. Yu.M. Baikov, M.E. Kompan, E.I. Nikitin, Yu.P. Stepanov, I.I. Novak, T.I. Aksenova, I.V. Khromushin, K.D. Bukenov, A.K. Berdauletov, Z.V. Medvedeva, B.Z. Volchek, N.F. Uvarov, V.P. Gorelov, *Ionics* 9 (2003) 395-403.
15. K.K. Munasbaeva, I.V. Khromushin, Zh.R. Zhotabaev, T.I. Aksenova, P.A. Kornienko, *Vestnik of NNC RK*, N3 (2008) 66-69.
16. Kishio Kohji, "Oxygen Nonstoichiometry, Defect Equilibrium and Phase Stability of Perovskite-based Ionic and Mixed Conductors" in: *Dynamic of Fast Ions in Solids and Its Evolution for Solid State Ionics*. Report of a Priority Area Research Program (FY 1995-1997) ed. Iwahara Hiroyasu et al, September 1998, pp.23-26.
17. I.V. Khromushin, T.I. Aksenova, Zh.R. Zhotabaev, K.K. Munasbaeva, *Izvestia Vuzov, Physics*, 51 (2008) 188-191.
18. Pal'guev, S.F., *Vysokotemperaturnye protonnye tverdye elektrolity: Obzor (High-Temperature Solid State Protonic Electrolytes: A Literature Review)* Yekaterinburg: Ural. Otd. Ross. Akad. Nauk, 1998.
19. Jae-Hwan Kim, Bun Tsuchiya, Shinji Nagata, Tasuo Shikama, *Solid State Ionics* 179 (2008) 1182-1186.
20. B. Tsuchiya, A. Morono, E.R. Hodgson, S. Nagata, T. Shikama, *Solid State Ionics* 179 (2008) 909-912.
21. L.A. Marchenko, Practical application perspectives of jointly-deposited hydroxides for sorption cleaning of water, *Conference "Waste water treatment"*, Kuban State Technological University, Krasnodar, Russia, 2008.
22. V. Bolis, G. Magnacca, G. Cerrato, C. Morterra. *Thermochim. Acta*, 379 (2001) 147.

### RADIATION DEFECTS ON OXIDE MATERIAL SURFACE

Tuseyev T.

*Institute of Nuclear Physics of NNC RK, Almaty, Kazakhstan*

Earlier we investigated the influence of ultra-violet and gamma radiation as well as neutrons and charged particles on the surface qualities of different oxide systems: oxides of silicon, beryllium, aluminum and others, in particular their absorbent qualities [1-7].

In the present work the analysis of the previous works has been carried out and suppositions concerning the reasons of radiation effects observed in the experiments have been given.

The influence of  $\alpha$ - and proton irradiation on surface properties of beryllium oxide were investigated by manometric and ESR-spectroscopic methods.

$\alpha$ - and proton irradiation of the system BeO-O<sub>2</sub> located in adsorptive - desorption equilibrium at room temperature generates irreversible additional adsorption of oxygen.

Comparison of the influence of  $\alpha$ -particle irradiation with energy 50 Mev and protons with energy 30 Mev, on accumulation of centers of adsorption shows that the speed of accumulation of active centers for O<sub>2</sub> under operating of  $\alpha$ -particles is more, than under operating of protons (fig. 1). This can be explained that  $\alpha$ -particles in comparison with protons possess a large ionizing ability that will lead to creation of a large number of adsorption centers.

Dose dependence of an adsorption of oxygen on beryllium oxide irradiated by alpha-particles and protons

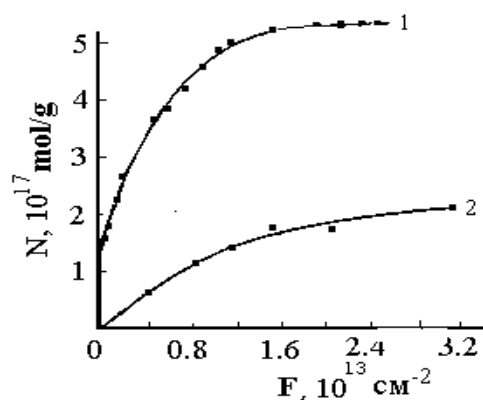


Figure 1. 1-alpha-particles (E=50 Mev). 2-protons (E=30 Mev)

As for mechanism of oxygen adsorption on BeO it is possible to make the following supposition: the surface of BeO is covered with hydroxyl groups and at irradiation they can be failed. Thus on a surface the active centers are created, which are capable to become by centers of adsorption. Besides the irradiation is capable to destroy an organic located in adsorbent volume and to generate diffusion of organic debris to a surface, which one entering in connection with an adsorbed gas molecule, can form new organic compounds, and by that veil process of radiation adsorption.

At irradiation of BeO the paramagnetic centers are formed, which have a complicated structure. The signals ESR on BeO, irradiated by protons, apparently, are formed both on a surface and in volume, as from the one hand at adsorption of oxygen there is decreasing of a signal amplitude (destruction of surface ESR centers), and on the other hand even flooding of free air does not completely destroy signals of ESR (volumetric ESR centers). The form of the signal at an adsorption of oxygen in comparison with vacuum-processes samples does not change.

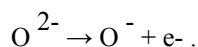
With increase of a dose in the field of a fluence  $F=4 \cdot 10^{13} - 3,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  a radiation annealing of paramagnetic centers is watched in vacuum-processed BeO. At further increase of proton flow ( $F > 1,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ) a cymbate change of quantity of paramagnetic defects, i.e. growth of PMC quantity has a place.

Dose dependence of concentration PMC BeO contained adsorbed  $O^2$  is characterized by a maximum in the field of a radiation dose  $F=3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ . The annealing of PMC begins at the growth of radiation dose ( $F=3,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ).

The paramagnetic centers, observed by us, are the sum of volumetric centers on a surface of paramagnetic centers. The accumulation curve of paramagnetic centers on a surface BeO with adsorbed oxygen lies above by accumulation curve of paramagnetic centers of vacuum-processed BeO, since the adsorption of oxygen on BeO increases quantity of paramagnetic centers, i.e. the oxygen is adsorbed in the ion - radical form  $O_2^-$ , as was watched in our experiments except for small doses ( $F=1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ). Since a fluence  $F=2,25 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  the number of paramagnetic centers in a system BeO- $O_2$  is more than in vacuum-processed one.

Comparison of irradiation influence of vacuum-processed samples BeO of  $\alpha$ -particles with energy 40 and 50 Mev and protons with energy 30 Mev has shown, that the regularity of accumulation of paramagnetic centers for  $\alpha$ - and proton irradiation has non-linear character: for all cases: the maximum is watched at value of a fluence  $F \leq 0,3 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ . After a narrow maximum the secondary growth of accumulation of paramagnetic centers is watched at doses  $F > 1,5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ .

At irradiation it is possible to suspect an appearance on a surface of BeO hole (BeO-) and electronic (Be +) centers at a gap of a complex Be-O-Be. Usually in such cases formation of hole centers (O-) descends at the expense of overshoot of an electron a zone - zone under such scheme:



Let's mark, that the hole centers can be formed with the participation of impurity atoms. The part of electrons, formed in this process, is stabilized on nuclear vacancies (F- centers)

\* The results of investigations on influence study of proton irradiation on systems  $Sc_2O_3-H_2$ ,  $Sc_2O_3-O_2$ ,  $Sc_2O_3-CO_2$  were found quite unexpected as radiation-stimulated adsorption was revealed in the first system only.

At the same time absorption rate of hydrogen in this case is more, than in case of  $\alpha$ -irradiation (fig. 2). Same it is possible to say concerning total quantity of centers of adsorption. Concerning the nature of centers of an acceptor type it is possible to suspect that atoms of lattice oxygen can be such centers, which affixing atoms of hydrogen, can form surface hydroxyl groups.

The radiation adsorption  $H_2, O_2$  and  $CO_2$  on monoxide of erbium at effect of protons was studied on samples previously annealed at different temperatures (700-1100K). It was revealed that the preliminary irradiation of  $Er_2O_3$  does not create centers of adsorption of a donor type (antipode of  $Sc_2O_3$  !).

At irradiation of a system  $Er_2O_3-CO_2$  the desorption of previously adsorbed carbonic acid takes place.

It is possible to suspect, that thus there is a power transmission of irradiation to adsorbed molecules of gas and they become " hot" and leave a surface of oxide - there is a desorption of previously adsorbed gas molecules. On the previously irradiated samples, to the contrary, there is a strong absorption of  $CO_2$ , probably, connected with a preliminary activation of a surface  $Er_2O_3$ . ( $Er_2O_3-H_2$ ,  $Er_2O_3-CO_2$ ).

Dose dependence of an adsorption of hydrogen on scandium oxide irradiated with charged particles.

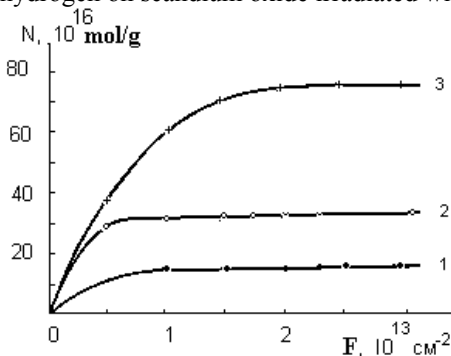


Figure 2. 1-  $\alpha$ -particles (E=40 Mev); 2-  $\alpha$ -particles (E=50 Mev); 3- protons (E=30 Mev)

As against other, in a system  $\text{Er}_2\text{O}_3\text{-O}_2$  the intensive oxygen absorption is watched at proton irradiation dependent on intensity ( $I=2,1 \cdot 10^9 - 5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$ ) of a flow of bombarding particles, initial gas pressure ( $P_0=20\text{-}10 \text{ Pa}$ ) and temperature of a preliminary annealing ( $T = 700\text{-}1100\text{K}$ ) of a sample.

Depending on these values the saturation dose over a wide range (sometimes in some times) also varies.

On a lanthanum oxide the adsorption of oxygen and hydrogen was studied at irradiation by protons with  $E_p=30 \text{ Mev}$  и  $\alpha$ -particles with  $E_\alpha=50 \text{ Mev}$ . The intensity of a flow of protons varied from  $1,1 \cdot 10^9$  to  $5,1 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ . The initial pressure of hydrogen and oxygen comprised  $9 - 16 \text{ Pa}$ . After irradiation of systems  $\text{La}_2\text{O}_3\text{-O}_2$ ,  $\text{La}_2\text{O}_3\text{-H}_2$  a thermal desorption of adsorbed gases was studied on them. As our experiments have shown, at irradiation by protons and  $\alpha$ -particles  $\text{La}_2\text{O}_3$  there is no additional adsorption  $\text{H}_2$ . Adsorption of hydrogen on a lanthanum oxide at preliminary irradiation (absence of effect of "memory") is not observed. Our experimental data confirm that on  $\text{La}_2\text{O}_3$  at irradiation by the protons and  $\alpha$ -particles a radiation adsorption of oxygen dependent on a kind, dose, intensity of a flow of dropping particles is observed (fig. 3).

At the same time the radiation adsorption of oxygen depends on initial pressure of oxygen. The adsorption of oxygen on a lanthanum oxide starts to go with noticeable speed at intensity of protons flow more than  $2,1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ , and at irradiation by  $\alpha$ -particles – at flows more than  $1,1 \cdot 10^9 \text{ cm}^{-2}$ .

Our experiments show that at irradiation by protons the maximum speed of adsorption is watched at intensity of a flow  $2,5 \cdot 10^{11} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{c}^{-1}$ . The further increase of intensity is accompanied by decreasing of absorption rate. Apparently, here we interfere with the fact of a radiation annealing of adsorption centers: the speed of accumulation of adsorption centers becomes less than the speed of destruction of the same centers under irradiation influence.

It is necessary to mark the fact of increase of a quantum yield (quantity of adsorbed gas per unit of a flow) with increase of intensity of a flow. At effect of  $\alpha$ -particles at a system of  $\text{La}_2\text{O}_3\text{-O}_2$  the same regularity is watched basically except for that fact, that at irradiation by  $\alpha$ -particles ( $E = 50 \text{ Mev}$ ) the quantum yield with other things being equal almost on the order is more, than at proton irradiation.

Dose dependence of adsorption of oxygen on a lanthanum oxide irradiated with charged particles.

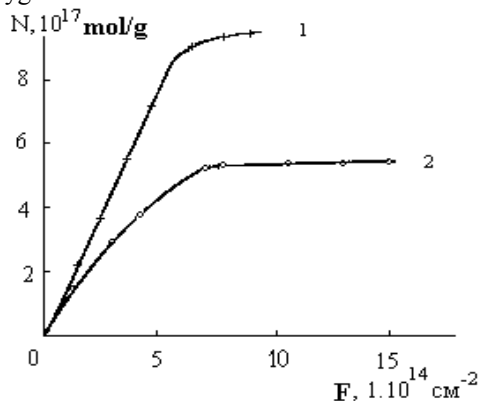


Figure 3. 1- protons; 2- alpha particles ( $E=50 \text{ Mev}$ ).

The dose of saturation depends both on intensity of a flow and initial pressure of adsorbed gas. At increase of intensity the dose of saturation decreases, with increase of initial pressure it increases. As well as in earlier investigated systems ( $\text{SiO}_2, \text{BeO}, \text{Al}_2\text{O}_3$ .) the radiation adsorption of oxygen on  $\text{La}_2\text{O}_3$  at room temperature is irreversible.

Various different kind of radiation influence on surface properties, in particular, adsorptive, was revealed and at some cases the general observation regularity of the radiation adsorption is upset. So, the hydrogen photoadsorption is not observed on silicon dioxide and on some other oxides. At the same time hydrogen adsorption takes place at the same oxides irradiation by more power nuclear particles, such as gamma - rays, protons of high energies, alpha-particles, neutrons, high-velocity electrons, and also at a X-irradiation.

At the same time oxygen adsorption takes place on the majority of the studied oxides. So it is possible to conclude that at the irradiated adsorbents the formation of electronic centers is general regularity. The radiation adsorption of oxygen is well studied on many systems and its regularities are established on numerous experiments.

On an example of such oxide systems, as silicon dioxide, oxides of rare-earth elements, beryllium oxide, aluminium oxide, the zeolites we have studied a general regularity of the oxygen and hydrogen radiation adsorption, i.e. their electron-hole properties at irradiation by protons with energy  $30 \text{ Mev}$ , alpha-particles and ions of helium-3 with energy  $40$  and  $50 \text{ Mev}$ , gamma- rays and ultra-violet-radiation, and also neutrons from the nuclear reactor.

Parallel with adsorptive properties of oxides their paramagnetic properties and thermal desorption characteristics in a wide range of temperatures were studied. The received data have allowed to find the dependence of paramagnetic centres from adsorptive centers. It was established that the adsorptive centers do not always coincide with paramagnetic ones and vice versa.

It was established that the anomalous effects in a radiation adsorption at irradiation of the oxide rare-earth elements on scandium, lanthanum, erbium and dysprosium oxides are observed. It was found out that radiation adsorption of hydrogen is absent on oxides of a lanthanum, erbium and dysprosium, i.e. under the of irradiation influence there is no formation of hole centers on these oxides.

In contrast to them the oxide of scandium obtains considerable radiation - adsorptive activity in relation to hydrogen and to the contrary has no acceptor capacity, i.e. it does not adsorb oxygen molecules.

Thus, we can mark three types of anomalies observed at analysis of the radiation adsorption (including the photoadsorption) of oxygen and hydrogen molecules on some oxides.

1. Absence of the hydrogen photoadsorption on a number of oxides, basically on wide-rang ones;
2. Absence of the oxygen radiation adsorption on oxide of scandium;
3. Absence of the hydrogen radiation adsorption on some oxides of rare-earth elements.

In the first case it is possible to explain absence of a hydrogen photoadsorption on wide-rang oxides by necessity of formed pair electron-hole division and jump of electron hole through a forbidden zone. As it is known the width of forbidden zone of wide-rang oxides are 8-10 eV. So of ultra-violet radiation energy (2-4 eV) is not enough for overpassing of this barrier.

In two last cases absence of a radiation adsorption may be explained by rare-earth elements structure.

#### References

1. Ermatov S.E., Tuseyev T. *Jornal of phys. chem (rus)*, 1980,v.54, p.1531
2. Ermatov S.E., Tuseyev T., Mosienko T.A. *Jornal of phys. chem. (rus)*, 1984,v.58, p.1627
3. Ermatov S.E., Tuseyev T. *Jornal of phys. chem. (rus)*, 1984,v.54, p.1139
4. Ermatov S.E., Tuseyev T., Vahabov M. *Izvestia AN UzSSR, ser.chim.nauc.*, 1990,№1, p.21
5. Ermatov S.E., Tuseyev T., Vahabov M. *Izvestia AN UzSSR, ser.chim.nauc.*, 1990,№1, p.45
6. Tuseyev T., *Izvestia MN-AN RK, ser.phiz-mat.nauc.*, 1998,№6, p.63
7. Tuseyev T., Polyakov A. I., Bitenbaev M.S. Abstracts the " Eurasia conference in Nuclear science and its application", Izmir (Turkey), 23-27 oct.2000

## **RADIATION-HETEROGENEOUS PROCESSES IN PHOSPORISED STAINLESS STEEL OF MARK 08H18X10 IN CONTACT WITH WATER**

Agayev T.N., Garibov A.A., Hashemi M.J., Gahramani M.R., Eyubov K.T.  
*Institute of Radiation Problems of the National Academy of Sciences of Azerbaijan*

*Phosporised stainless steels contain constant impurity which are introduced in them during manufacture and which influence their structures and properties basically. Constant impurity are: Si, Mn, S, P and gases-O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>. The maintenance of phosphorus in steel is supposed no more than 0,07 %. Phosphorus reduces durability and plasticity, and also impact strength of steels. Thus phosphorus is dissolved in ferrite and makes its firm and fragile [1-4]. As a result raises the temperature of a threshold *хладоломкости*. Hence, phosphorus gives to steel *хладоломкость*. Phosporised stainless steels are applied as materials of nuclear reactors. However, influence of radiation on phosporised stainless steels is not enough investigated.*

### **EXPERIMENTAL PART**

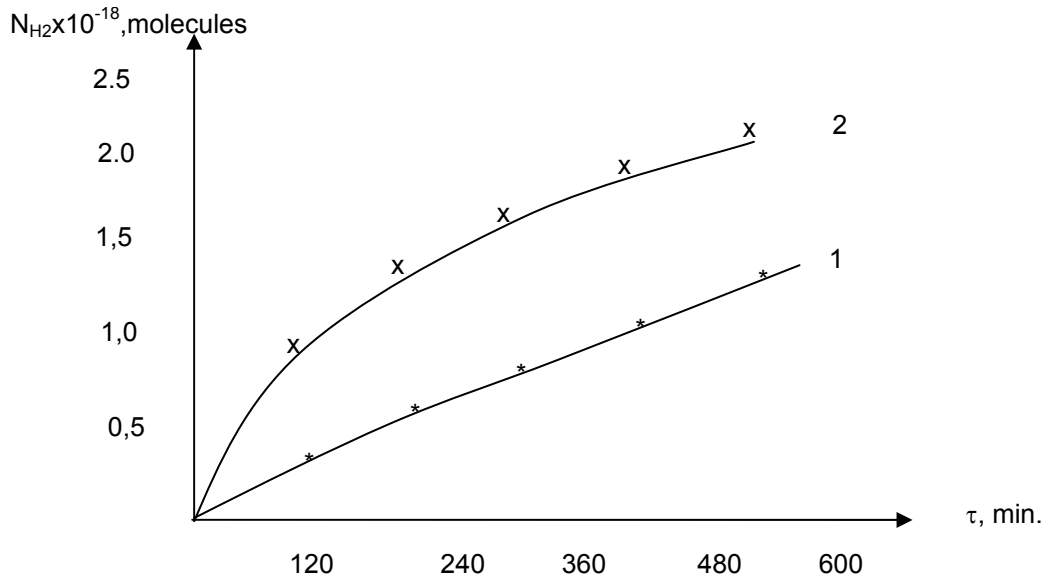
In experimental works the model of reactor conditions in contact of constructional materials with the heat-carrier was created. Researches were spent in static conditions in special quartz ampoules in volume of 0,25-0,3 sm<sup>3</sup>. As object of research took reactor stainless steel of mark 08H18X10 in the form of a thin tape. A contacting surface of samples determined on the basis of their geometrical sizes which made 17,23 sm<sup>2</sup>/q. With the purpose of exception of the contribution of organic pollution on a surface in process of H<sub>2</sub> accumulation samples were preliminary cleared by the organic dissolver- ethyl spirit, acetone, and then washed out by the distilled water. This operation was repeated with 3 times then samples dried up at temperature T=300-320K in the environment of inert gas. Drying continued with simultaneous pumping out of environment. Then samples in quartz ampoules subjected to thermo vacuum processing at first at T=373K, then at T=673 K, P≈ 10 mm.merc.col. Filling of ampoules by water and soldering was made on vacuum-adsorption equipment. The density of water vapors in ampoules was  $\rho_{H_2O} = 5 \text{ mQr/sm}^3$ . In an interval of temperatures 673 - 873K in volume of ampoules waters vapor pressure was P~ 10-15 atm.

It is known, that one of ways of increase of stability of phosporised corrosion-proof steel (p.c.p.s.) materials to influence of ionizing radiation and chemical passivation of a surface is the creation of thin oxide film on a surface of metals. With this purpose usually p.c.p.s materials are exposed to preliminary heat treatment under certain conditions. As a result of these processes a oxide film is formed on a surface which prevents the further oxidation of metal. However, experience of operating of these materials in real conditions of nuclear reactors shows that the film formed by the thermal processing, at heats (T≥973), is non-uniform and unstable in rigid operating modes. Therefore represents the big scientific and practical interest development of new ways of entering protective oxide film on a surface of p.c.p.s. materials. With this purpose we research process of radiation-oxidizing processing of p.c.p.s. materials in contact to peroxide of hydrogen at a room temperature. Increasing of stability of p.c.p.s. materials to influence of temperature, ionizing radiation and active products of radiolytic decomposition of the heat-carrier achieves by downturn of temperature of preliminary processing, creation of oxidizing products in surface layer by the radiolysis of hydrogen peroxide [5].

The temperature at carrying out of experiments was maintained with accuracy ± 1C. Radiating and radiation-thermal processes were spent on an isotope source of quants - <sup>60</sup>Co. Dosimetry of a source were made by chemical dosimeters - ferrosulphate, cyclohexane and methane [6]. Recalculation of a doze in investigated system was made by comparison of electronic density.

Gas products of processes were translated in the special graduated volumes and analyzed by a method of a gas chromatography (« Gazokhrome - 3101 »). At radiolytic process at  $T=300K$  in structure of gas products except for  $H_2$  it is observed also  $O_2$ , and at thermo radiation process it is observed only  $H_2$ .

With the purpose of revealing of influence of metal materials (alloys) on waters radiolysis, it is investigated the kinetics of molecular hydrogen accumulation at radiolytic decomposition of water and system water + p.c.p.s. at  $T=300K$  at various contents of phosphorus (pic.1).

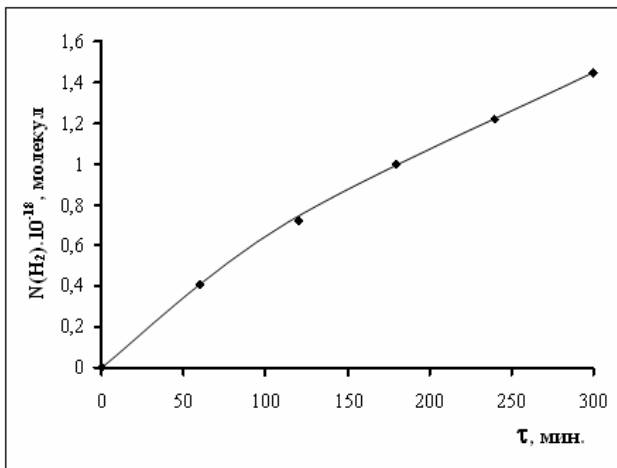


Pic.1. Kinetic curve of molecular hydrogen accumulation at heterogeneous processes in contact of phosphorised stainless steel in contact with water at  $T = 300K$ ,  $D=0.54$  Grey/sec and  $\rho_{H_2O} = 5$  mg/sm<sup>3</sup>. 1) 12 % P, 2) 9 % P

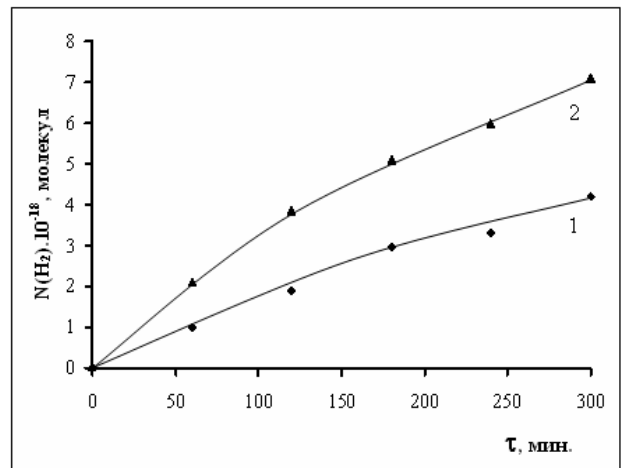
On an inclination of a curve in its initial linear area speeds of formation and a radiation-chemical yield of molecular hydrogen  $G(H_2)$ .  $G(H_2)$  are certain thus made 0,67 molecules/100 eV. The observable gain of values  $G(H_2)$  at radiolysis of waters at presence of phosphorised stainless steel in comparison with an yield of clean water radiolysis can be explained by the contribution of  $\delta$ -electrons emitted from metal under influence of  $\gamma$ -quantum and formation of active centers on a surface of steel.

Except for this with the purpose of revealing of laws of influence of temperature on radiation-heterogeneous processes in system p.c.p.s.+ water are carried out researches of accumulation of molecular hydrogen and oxidation of metal at various temperatures (pic.2-5) On the basis of dependences  $G(H_2) = f(t)$  values of  $G(H_2)$  in the field of temperatures  $T=300-673K$  are determined.  $G(H_2)$  is equal 23,2 molecules/100eV at  $T = 673K$ .

Schematically radiation-thermal processes of decomposition of water in contact to metal surfaces can be presented as follows. As a result of radiating and thermal processes on a surface the active centers ( $S^*$ ) are formed:

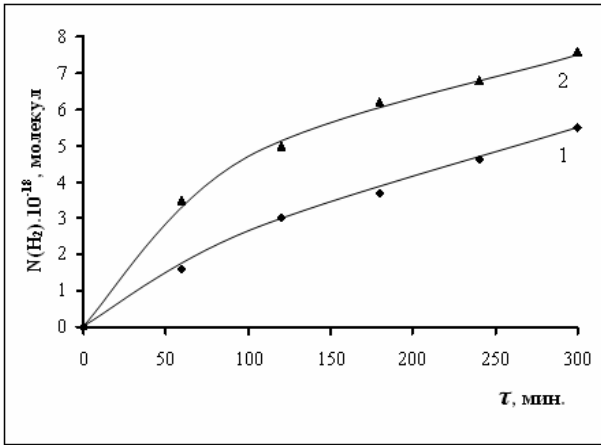


Pic.2. A kinetic curve of of molecular hydrogen accumulation at radiation-catalytic process of decomposition of water at presence of phosphorised stainless steel at  $T = 373K$ ,  $D = 0,54$  Grey/sec,  $\rho_{H_2O} = 5$  mg/sm<sup>3</sup>

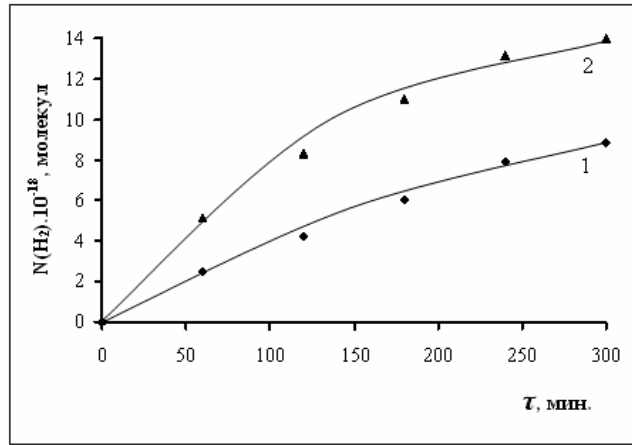


Pic.3. Kinetic curve accumulation of molecular hydrogen at radiation-thermal (2) and thermal (1) processes of decomposition of water at presence of phosphorised stainless steel at  $T = 473K$ ,  $D = 0,54$  Grey/sec,  $\rho_{H_2O} = 5$  mg/sm<sup>3</sup>



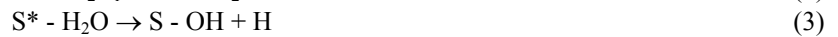


Pic.4. Kinetic curve accumulation of molecular hydrogen at radiation-thermal (2) and thermal (1) processes of decomposition of water at presence of phosphorised stainless steel at T = 573K, D = 0,54 Grey/sec, ρ<sub>H2O</sub> = 5 mg/sm<sup>3</sup>



Pic.5. Kinetic curve accumulation of molecular hydrogen at radiation-thermal (2) and thermal (1) processes of decomposition of water at presence of phosphorised stainless steel at T = 673K, D = 0,54 Grey/sec, ρ<sub>H2O</sub> = 5 mg/sm<sup>3</sup>

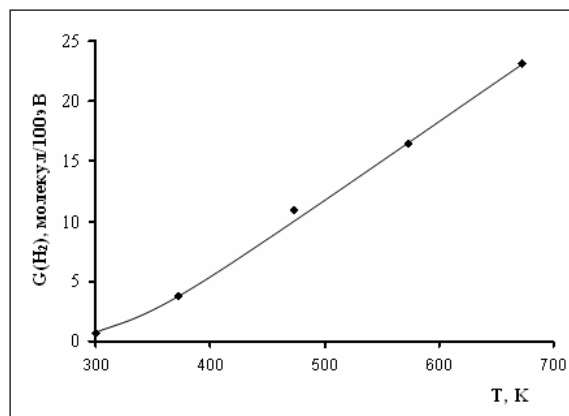
On the formed active centers there is an adsorption of molecules of water occurs with the formation of complexes (S\* - H<sub>2</sub>O) which in the further dissociate with formation of H<sub>2</sub>:



Formation of the active centers (1) at radiating and thermal processes in comparison with stages (2) and (3) is fast process and as a first approximation it is possible to consider, that in the beginning of adsorption there comes a stationary condition during generation of the active centers.

At influence of-quantums on system p.c.p.s + water the positive charged ions (particles), secondary electronic radiation and active conditions of a surface are formed. Among these particles rather highly power are e<sub>sec</sub> and S\*. Secondary electronic radiation in surface layer creates area of a high doze and in this area additional energy is transmitted to molecules of water. Certain part of S\* is in rather high power condition and their energy can be transmitted to the adsorbed molecules of water. The contribution of these processes leads to increase of yield of molecular hydrogen at waters radiolysis at presence of phosphorised stainless steel at T = 673K.

In figure 6 it is shown dependences of a radiation-chemical yield of molecular hydrogen G (H<sub>2</sub>) from temperature.



Pic.6. Dependence of a radiation-chemical yield of molecular hydrogen G (H<sub>2</sub>) from temperature at D=0,54 Grey/sec and = 5 mQr/sm<sup>3</sup>

As it is shown from pic.6, values of radiation-chemical yield of H<sub>2</sub> in the field of temperatures 300-673K grows and at T=673K corresponds G (H<sub>2</sub>) = 23,2 molecules/100 eV. Preliminary processing of p.c.p.s. at more heats leads to increase in superficial activity and increase of a radiation-chemical yield of molecular hydrogen.

On the basis of experimentally observable values W (H<sub>2</sub>) = f (T) in Arrhenius coordinates, values of energy of activation are determined.

As a result of oxidizing processing of phosphorised stainless steel formed on a surface of metal thin oxide film - phosphides (Fe<sub>2</sub>P) and oxide elements has nano-dimension, and also 9 % phosphorised stainless steel have more stability to radiation-thermal processes, than 12 % P

**Literature:**

1. В.Н.Воеводин, И.М.Неклюдов. Эволюция структурно-фазового состояния и радиационная стойкости конструкционных материалов. Киев:«Наукова думка»,2006,378 с.
2. С.Н.Колесов, И.С Колесов. Материаловедение и технология конструкционных материалов. М.: «Высшая школа», 2007, 535 с.
3. И.В.Семенова и др. Коррозия и защита от коррозии. М.: Физматлит, 2006, 372 с.
4. А.А.Гарибов и др. Эффект радиации в гетерогенных процессах в контакте циркониевых материалов с водой. Вопросы атомной науки и техники. Вып.1, М.:1991, с.13-15.
5. Т.Н.Агаев. Эффект воздействия радиации на предварительно радиационно- окислительно обработанную нержавеющую сталь. Журнал Металловедение и термическая обработка металлов, 2009, с. 49-52.
6. А.К.Пикаев. Дозиметрия в радиационной химии. М.:Наука,1975,с.11-13.

**RADIOLYTIC-THERMO CATALYTIC PROCESSES IN SYSTEM Ra-SiO<sub>3</sub>+H<sub>2</sub>O**

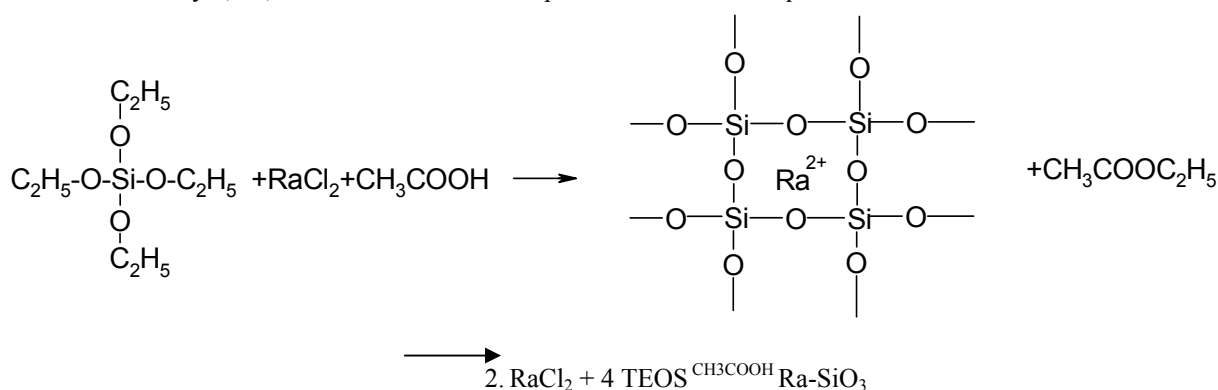
Agaev T., Garibov A.A., Mansimov Z.A., Eyubov K.T.

*Institute of Radiation Problems of the National Academy of Azerbaijan, Baku, agayevteymur@rambler.ru*

*It is known, that change of the maintenance of radium in radium silicate renders the big influence on their physical and chemical, including adsorption and catalytic properties. However, laws of influence of the maintenance of radium on radiation - heterogeneous processes of decomposition of substances in contact of radium silicates are unknown and represent great value at the decision of problems of radiation catalysis, radiating materiality and at the decision of radio environmental problems [1-5]. Therefore in given article with this purpose it is investigated the kinetics of radiolytic decomposition of water in contact with radium silicate, depending on the radium maintenance at various temperatures.*

**THE EXPERIMENTAL PART**

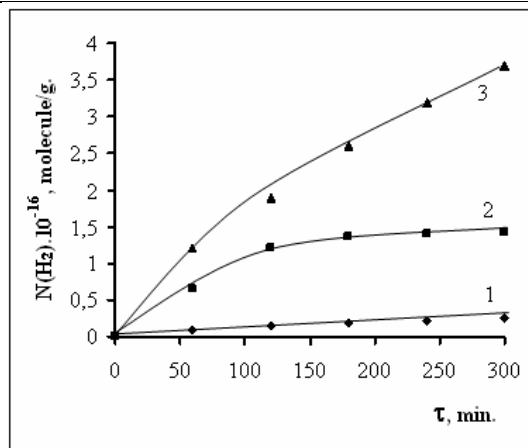
In radiation-chemical processes Ra-SiO<sub>3</sub> is one of the major connections. Researches of the Ra-SiO<sub>3</sub> have been received in various activities. For synthesis by primary products have been used RaCl<sub>2</sub> and TEOS (tetraethylortosilicate). At the same time for removal of intermediate products of reaction were used CH<sub>3</sub>COOH. Therefore for synthesis all over again was received SiO<sub>2</sub>. For this purpose has been taken TEOS and the solution of CH<sub>3</sub>COOH is added to him at the certain temperature (T>60°C). Intermediate product C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH reacts with CH<sub>3</sub>COOH therefore it is formed ethers of etylacetate. As a result, by a primary product has been received pure SiO<sub>2</sub>. Received SiO<sub>2</sub> has been dried up in dry case under vacuum. Other samples of silicate have been synthesized in the same order. First in reaction it has been added RaCl<sub>2</sub>. For reception of various activity of RaSiO<sub>3</sub> samples different amounts of RaCl<sub>2</sub> have been added in reaction. By the spectroscopic method certain activity of RaCl<sub>2</sub> and activity of radium-silicate is established. It have been synthesized RaSiO<sub>3</sub> with various activity without changing amount of TEOS, and increasing concentration of RaCl<sub>2</sub>. Have been taken 1 volume of TEOS, and RaCl<sub>2</sub> is taken in conformity 1, 10, 20 volumetric ratio. It is possible to write the equation of reaction:



The received samples have been dried up in dry case under vacuum. By a spectrometer method are determined the activity of radium-silicate which are equal 260 Bк / qr, 2500 Bк / qr, 6100 Bк / qr accordingly.

**RESULTS AND DISCUSSION**

It is investigated the kinetics of accumulation of molecular hydrogen at radiolysis of waters at presence of radium silicate depending on the maintenance of radium at a room temperature (pic. 1).



Pic.1. The kinetics of accumulation of molecular hydrogen at radiation-catalytic decomposition of water at presence of radium-silicate with Various maintenances of radium at T = 300K, D=0,5 Gp/Sec, ρ<sub>H2O</sub>=5 мГ/sm<sup>3</sup>  
 1. A=260 Bk/gr; 2. A=2500 Bk/gr; 3. A=6100 Bk/gr

On an inclination of a curve in its initial linear area speeds of formation and radiation-chemical yield of molecular hydrogen G (H<sub>2</sub>) which are equal 0,012,0,09 and 0,12 accordingly are investigated. Except for that, also values of radiation-chemical yield of molecular hydrogen, on the energy absorbed by the common system the catalyst + адс. H<sub>2</sub>O (G<sub>total</sub>.) and adsorbed phase (G<sub>ads</sub>.) are received.

In table 1 values of a radiation-chemical yield of the molecular hydrogen, calculated on the energy absorbed by the common system the catalyst + adsorbed H<sub>2</sub>O - G (total) and only adsorbed phase - (G<sub>ads</sub>.) are brought also. Apparently, in all systems G<sub>ads</sub> (H<sub>2</sub>) ≥ G<sub>total</sub> (H<sub>2</sub>), that testifies to influence of the examined samples of silicates on processes of formation of molecular hydrogen at radiolysis waters in contact to them.

Thus the received results on studying of radiation-catalytic activity of various forms of radium-silicate during radiolysis of waters (T=300) show, that high catalytic activity has radium silicate with A=6100 бк/гр.

Table №1. Influence the maintenance of radium on radiation-catalytic activity of radium-silicate during waters radiolysis.

The maintenance of activity of radium in radium silicate, бк/гр	G <sub>ads</sub> (H <sub>2</sub> ) molecules/100 eV		W (H <sub>2</sub> ) x10 <sup>12</sup> molecules/гр.sec	G <sub>общ.</sub> (H <sub>2</sub> )
260	0,33	0,012	2,61	
2500	2,25	0,09	17,6	
6100	3,06	0,12	23,87	

Thus various activity silicate systems can influence on processes of radiolysis as follows:

-various activity silicates influence on diffusion and recombination processes of intermediate products of waters radiolysis. Radical products are shared into surfaces of silicates and by that interfere with processes of recombination of heteronym radicals H and OH:



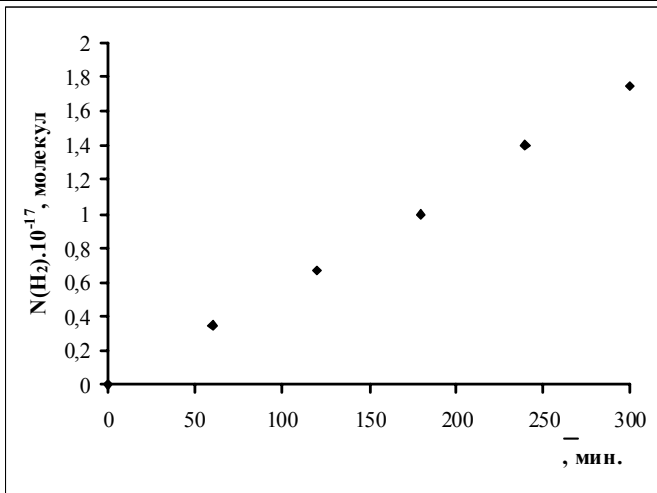
Promoting thus to processes of recombination of the same radicals:



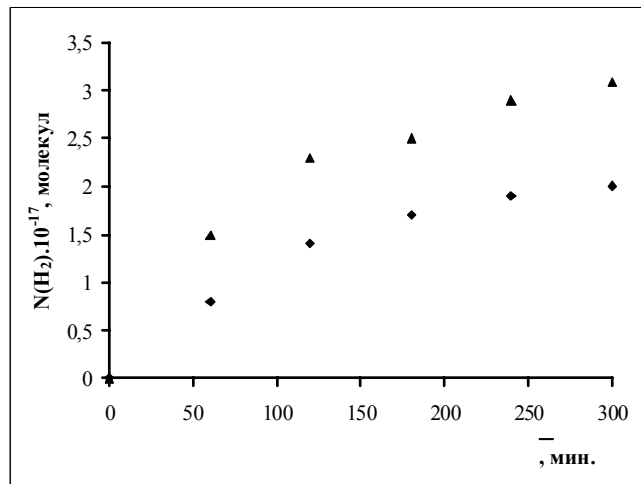
Thus maximal expected yield of molecular hydrogen in view of nonaccepted yield at radiolysis of water [7] cannot exceed G<sub>ads</sub>. (H<sub>2</sub>) = 2,5÷3,0 molecules/100 eV.

-radiating processes in oxide catalysts influence on primary physical stages of waters radiolysis on surfaces of oxides. The main way of influence of the catalyst at this stage of heterogeneous radiolysis of waters is transfer of energy from a solid body to adsorbed molecules. In this case values of an yields of decomposition of water and yields of molecular products will strongly distinguish from yields at homogeneous radiolysis of waters and G<sub>ads</sub> (H<sub>2</sub>) > 3,0 molecules/100 eV. In view of complexity of the mechanism of heterogeneous radiolysis of waters on experimentally observable yield of molecular hydrogen cannot be judged unequivocally presence of the first channel of influence of oxide catalyst on process of waters radiolysis.

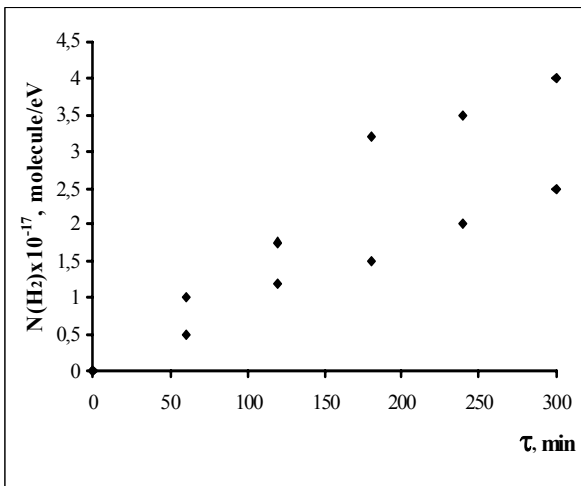
With the purpose of revealing of the contribution of thermo catalytic processes in radiation-thermo catalytic decomposition of water it is investigated the kinetics of accumulation of molecular hydrogen at thermo catalytic and radiation-thermo catalytic decomposition of water at presence of radium-silicate depending on the maintenance of radium in an interval of temperatures T=300÷673 (Pic..2-6).



Pic.2. The kinetics of accumulation of molecular hydrogen at radiation-catalytic decomposition of water at presence of radium-silicate with radium activity ( $A = 260 \text{ Bк/qr}$ ) at  $T = 573\text{K}$ ,  $D=0,5 \text{ Gr/sec}$ ,  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=5 \text{ мГ/см}^3$



Pic.3. Kinetic curve of accumulation of molecular hydrogen at thermo catalytic (1) and radiation - thermo catalytic (2) decomposition of water at presence of radium-silicate with activity of radium ( $A = 260 \text{ Bк/qr}$ ) at  $T = 673\text{K}$ ,  $D=0,5 \text{ Gr/sec}$ ,  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=5 \text{ мГ/см}^3$



Pic.4. The kinetics of accumulation of molecular hydrogen at radiation-catalytic decomposition of water at presence of radium-silicate.  
1.  $A = 2500 \text{ Bк/qr}$ ; 2.  $A=6100 \text{ Bк/qr}$  at  $T = 573\text{K}$ ,  $D=0,5 \text{ Gr/sec}$ ,  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=5 \text{ мГ/см}^3$

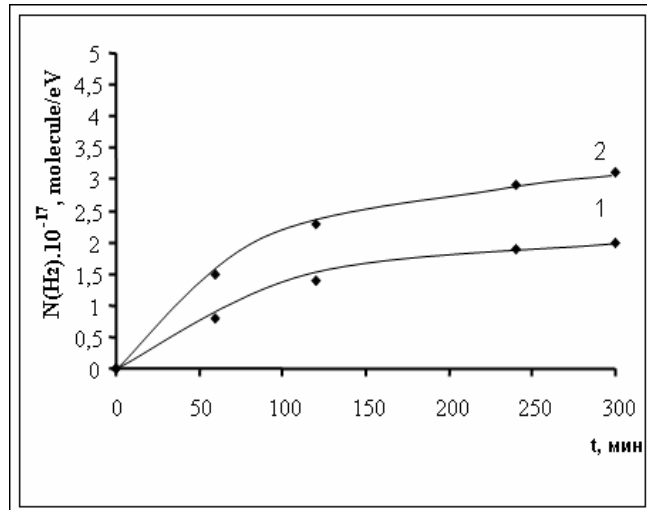


Рис.5. Kinetic curve accumulation of molecular hydrogen at thermo catalytic (1) and radiation-thermo catalytic (2) decomposition of water at presence of radium-silicate with radium Activity ( $A = 2500 \text{ Bк/qr}$ ) at  $T = 673\text{K}$ ,  $D=0,5 \text{ Gr/sec}$ ,  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=5 \text{ мГ/см}^3$

It is established, that radium silicate depending on the maintenance of radium at  $T=573$  has thermo catalytic activity during decomposition of water.

The yield of molecular hydrogen thus depends basically only on temperature. On the basis of these results it is possible to make the assumption, that on a surface of various activity of radium silicate are available various thermo catalytic active centers which becomes more active at various temperatures. On an initial linear site of these curves values of speeds of radiation-thermocatalytic  $W_{\text{PT}}(\text{H}_2)$  and thermo catalytic  $W_{\text{T}}(\text{H}_2)$  processes of reception of molecular hydrogen are investigated. Speed of a radiating component of radiation-thermocatalytic heterogeneous processes was defined on a difference

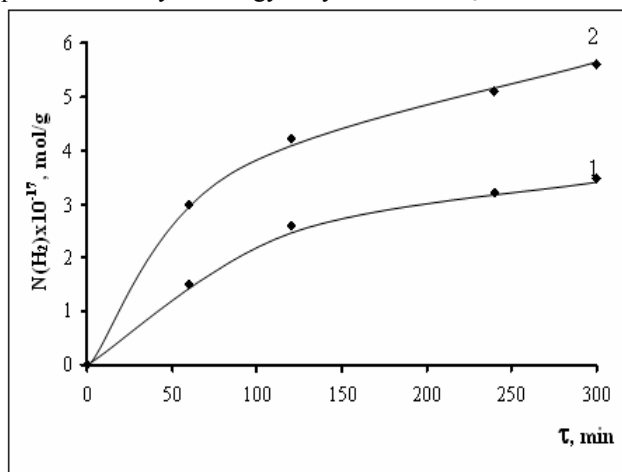
$$W_{\text{P}}(\text{H}_2) = W_{\text{PT}}(\text{H}_2) - W_{\text{T}}(\text{H}_2) \quad (5)$$

On the basis of values of speeds of a radiating component of radiation-thermo catalytic processes values of a radiation-chemical yield of molecular hydrogen are founded.

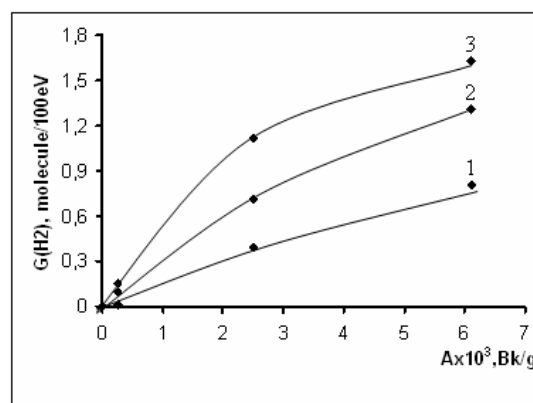
It is established, that radium silicate at temperature  $T=573$  has thermo catalytic activity during decomposition of water. The yield of hydrogen thus depends basically only on temperature. It testifies that only the certain part of radium, entered into structure of radium-silicate plays a role of radiation-catalytic active centers during waters radiolysis.

On pic.7 dependences of radiation- chemical yield of molecular hydrogen  $G(\text{H}_2)$  from various activity of radium at various temperatures are brought. The received results show, that rise in temperature (depending on activity of radium) from 300 up to 673 causes increase in a radiation-chemical yield of molecular hydrogen from 0,81 up to 1,63 molecules/100 eV. The

observable gain of a radiation-chemical yield of molecular hydrogen with temperature testifies to influence of temperature on process of carry of energy in system  $\text{Ra-SiO}_3+\text{H}_2\text{O}$ .



Pic.6. Kinetic curve of molecular hydrogen accumulation at thermo catalytic(1) and radiation-thermo catalytic (2) decomposition of water at presence of radium-silicate with radium activity ( $A = 6100 \text{ Bk/qg}$ ) at  $T = 673\text{K}$ ,  $D=0,5 \text{ Gr/sec}$ ,  $\rho_{\text{H}_2\text{O}}=5 \text{ mG/sm}^3$



Pic.7. Dependence  $G(\text{H}_2) = f(A)$  at waters thermo radiolysis at presence of various activity of radium-silicate. 1.  $A=260 \text{ Bk/qg}$ , 2.  $A=2500 \text{ Bk/qg}$ , 3.  $A=6100 \text{ Bk/qg}$ .

On the basis of these results it is possible to make the assumption, that on a surface of radium - silicate are available various thermo catalytic active centers which become more active at various temperatures. With rise in temperature during thermo catalytic decomposition participate less active centers.

Thus at rise in temperature  $T > 573\text{K}$  at heterogeneous radiolysis of waters at presence of radium silicate occurs thermo catalytic and radiation-thermo catalytic decomposition of water.

#### THE LIST OF THE LITERATURE

1. Погодин С.А., Либман Э.П. Как добыли советский радий. М.: Наука, 1977, 250 с.
2. Баранов В.Ю. Изотопы, свойства, получение, применение. М.: Наука, 2000, 147 с.
3. Старосельская-Никитина О.А. История радиоактивности в возникновении ядерной физики. М.: Наука, 1963, 314 с.
4. Венецкий С.И. О редких и рассеянных. М.: Наука, 1981, 175 с.
5. Landa E.R. The first Nuclear Industry. Scientific American. 1982, 223 p.
6. Боресков Г.К. Гетерогенный катализ. М.: Наука, 1988, с. 75.
7. Адамсон А. Физическая химия поверхностей. М.: Мир, 1979, с. 247

### RESEARCHES OF REACTOR RADIATION INFLUENCE ON PROCESSES OF HYDROGEN ISOTOPES INTERACTION WITH MATERIALS OF FUSION REACTORS

Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Tazhibaeva I.L., Barsukov N.I., Gordienko Yu.N.,  
Ponkratov Yu.V., Sadvakassova A.O., Tulubaev Ye.Yu., Chikhray Ye.V.  
*Institute of Atomic Energy of NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan*

Studying of the process of hydrogen isotopes permeation through structural materials of fusion-type reactor (FTR) is very important from the standpoint of knowledge about the mechanism of phenomena, namely the leakage of tritium through protective barriers.

In FTR during its operation period the structure and mechanical properties of structural materials under the impact of intensive irradiation that changes their performance capabilities. Therefore the test of promising candidate material under complex impact of real operational factors in fission and fusion facilities is the must for substantiation of its application.

Presented paper shows the results of series of experimental study of hydrogen isotopes interaction with some candidate materials for FTR (tungsten, oxygen-free copper, SS316IG steel (ITER Grade)) under reactor irradiation.

#### Experimental facility

The reactor experiments were carried out at IVGIM reactor of Kazakhstan National Nuclear Center, located in Kurchatov city, Kazakhstan) operated at various powers (neutron flux range was from  $1 \cdot 10^{13}$  to  $5 \cdot 10^{14} \text{ n/(sm}^2\text{·s)}$ ). Table 1 present the values of neutron flux at 6 MW of reactor power.

Experiments were conducted with use of experimental test stand LIANA which is dedicated for in-pile study of hydrogen isotopes interaction with structural materials of fission and fusion reactors at different temperatures and gas pressures. The scheme of the test stand is shown at figure 2 (detailed description is given in [1]).

TABLE 1. Neutron flux in the core center of IVG1M reactor at 6 MW power

Energy range	0–0.67 eV	0.67 – 0.1·10 <sup>6</sup> eV	0.1–10 MeV	Integral flux
Neutron flux, 1/(cm <sup>2</sup> ·s)	0.87·10 <sup>14</sup>	0.42·10 <sup>14</sup>	0.22·10 <sup>14</sup>	1.5·10 <sup>14</sup>

The stand LIANA consists of vacuum and control and measurements systems. Vacuum system provides operating condition for experiments. It consists of vacuum chamber with two mass-spectrometer gas-analyzers and ampoule device with examined samples (Fig. 3). Measurement system provides control, real-time registration and post-analysis of all collected experimental data obtained with the stand.

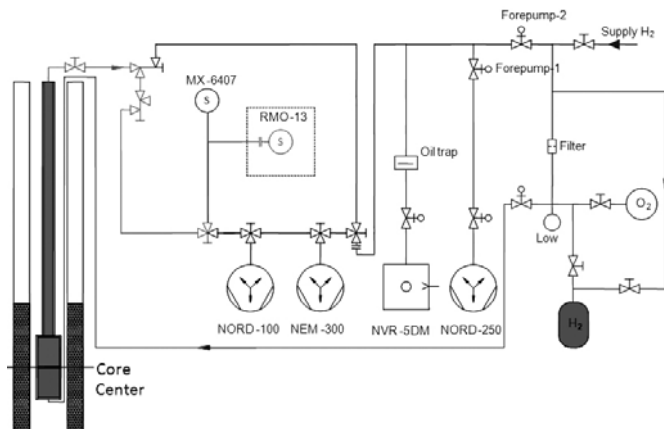


Fig. 2 – The scheme of LIANA experimental stand

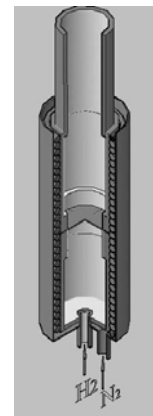


Fig. 3 – Ampoule device and location of the sample

### Experimental study of hydrogen isotopes interaction with tungsten

Tungsten is planned to be used as a plasma facing material in ITER and other projected FTR.

Tungsten merits are its high threshold of physical sputtering and lack of chemical sputtering by hydrogen. Particularly in DEMO reactor the tungsten is going to be used as the material of some parts of divertor as most power loaded component of fusion facility, i.e. determining the safety of its operation. Divertor's operation conditions assume the simultaneous influence of neutron flux and hydrogen isotopes; therefore it's so important to have experimental data about the parameters of such an exactly simultaneous influence.

In this work the samples of polycrystalline tungsten were studied. The part of studied samples was preliminary annealed at 1873K in a vacuum during one hour.

The experiment's sequence of operation was as follows: The samples were placed in-channel ampoule device, vacuumised and then saturated with deuterium under specific temperature and pressure.

Experiments were carried out in two stages: out-of-pile and in-pile experiments at different values of reactor power. After that the saturated samples of tungsten were used for thermodesorption measurements.

*The experimental conditions of in-pile saturation of tungsten with deuterium in details:*

- Temperature range was from 1123 to 1223 K;
- Deuterium pressure was within 10<sup>4</sup> -10<sup>5</sup> Pa;
- Experiments were carried out at reactor power 2,0 and 4,0 MW;
- Tungsten sample's size was 0,5×5×5 mm.
- Saturation time 2000 s.

The peculiarity of each out-of-pile and in-pile experiment was that we placed in ampoule device two kinds of tungsten samples: one sample of raw tungsten (not annealed) and three samples of tungsten preliminarily annealed in vacuum at 1873 K.

*The conditions of thermodesorption spectra (TDS) study of deuterium saturated samples of tungsten:*

- Heat rate in TDS measurements of annealed tungsten was 5, 10, 15 K/minute;
- Heat rate in TDS measurements of raw tungsten was 5 K/minute;
- Residual gas pressure during TDS measurements was about 10<sup>-5</sup> Pa.
- Irradiation time for reactor experiments was 2000 s.

The conducted comparison of deuterium gas yield from annealed and raw samples of tungsten (see figure 4 for example) in all similar conditions shows that much more deuterium was dissolved in raw tungsten than in annealed one. This fact was established also in out-of-pile control experiments and evidence about different mechanisms of hydrogen interaction/dissolution with tungsten of different pre-history.

So the analysis of TDS spectra of deuterium yield from annealed and raw samples of polycrystalline tungsten shows the effect of preliminary high-temperature anneal on kinetics of deuterium release. The so stated effect consists in that for similar condition of experiment the raw polycrystalline tungsten absorbs much more deuterium than annealed one.

This difference in the character of deuterium yield from different types of tungsten samples is related most likely with porosity of raw tungsten and with peculiarity of hydrogen isotopes dissolution in it. Such a high-temperature peak of deuterium yield from raw sample could be interpreted as deuterium yield at dissociation of hydrocarbons which are located in

the metal. This fact is confirmed with the results of Auger-analysis of carbon behavior at tungsten surface which are presented in [2, 3, 4].

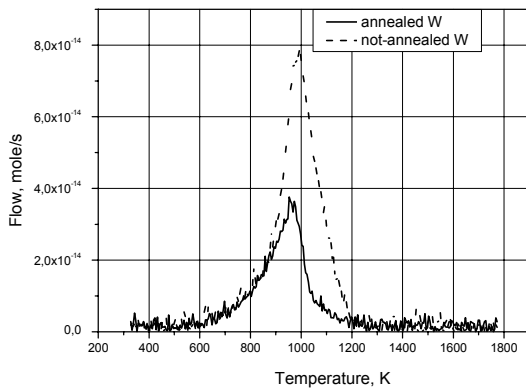
Figures 5 illustrate the effect of reactor irradiation on deuterium yield from annealed tungsten. It's clear that deuterium yield from annealed and in-pile saturated tungsten is higher. At that the dose dependence is apparent – as reactor power rise, so raise the deuterium yield.

For raw tungsten samples the effect is inverse (see figure 6): besides the significant changes of TDS peak's shape for different conditions of saturation there is also inverse effect of dose dependence of deuterium yield. Maximal amount of deuterium yield was registered for samples saturated out-of-pile.

Reactor irradiation leads to reduction of deuterium yield from raw polycrystalline tungsten with the similar proportionality to reactor power but of reverse sign - as reactor power decrease, so raise the deuterium yield.

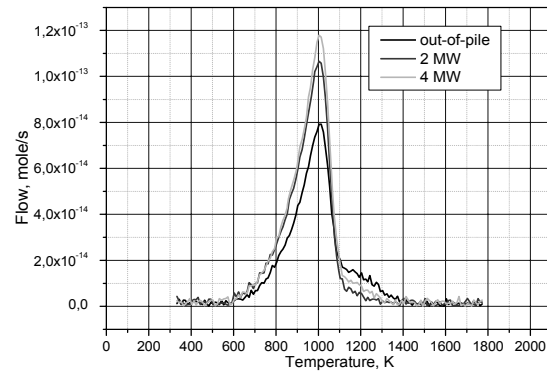
TDS spectra were described by simple phenomenological model that describes of deuterium desorption from tungsten as combination of flows: from bulk metal and from its surface. The diffusion coefficient was derived for annealed set of tungsten samples only.

Calculated values of deuterium solubility in tungsten for different saturation conditions are given in figure 7. It is clear that process of deuterium sorption is of complex nature. At the same time while the bulk solubility of deuterium increase under irradiation (with clear dose effect), the sorption capacity of tungsten surface decrease noticeably. Observed effect could be completely governed by behavior of presented in tungsten carbon. Reduction of sorption capacity of tungsten surface under irradiation in related with reduction of carbon concentration at tungsten surface due to its radiation-induced dissolution in tungsten bulk. At the same time, as we mentioned above, the dissolved carbon is trapped finally with the bulk defects such as grain boundaries. It increases the sorption capacity in tungsten bulk which was observed in experiments.



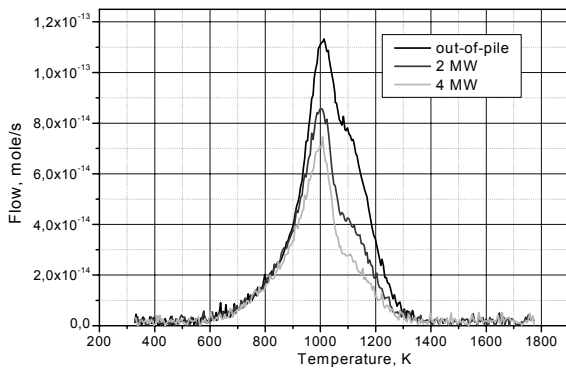
(Heat rate 5 K/min, saturation temperature 1223 K, reactor power – 2 MW)

Fig. 4 – TDS spectra of deuterium yield from annealed and not-annealed sample of tungsten after in-pile saturation



(Heat rate 10 K/min, saturation temperature 1223 K)

Fig. 5 – TDS spectra of D<sub>2</sub> yield from annealed samples of W, saturated at different neutron flux



(Saturation temperature 1223 K)

Fig. 6 – TDS spectra of D<sub>2</sub> yield from not-annealed samples of W, saturated at different neutron flux

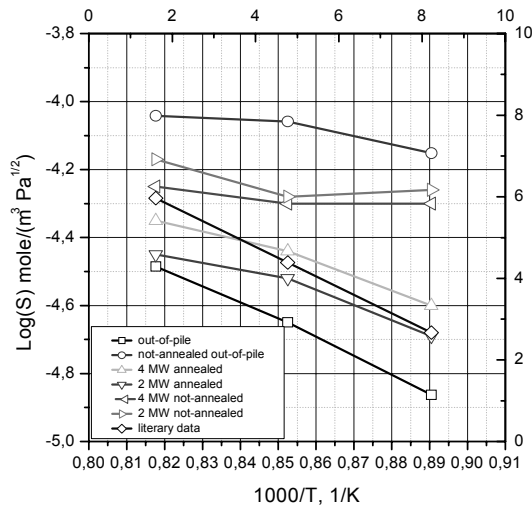


Fig. 7 – Temperature dependences of deuterium solubility in tungsten

### Experimental study of interaction of hydrogen isotopes with copper

Copper with its high plasticity and thermo conductivity is one of main functional materials already used in FTR and surely be used there in future. For example the insert of copper-based material between the protective plates of first wall of FTR and cooling system channels allows significantly reduce interface and other stresses acting in the assemblies; provides better heat-sink from protective plates, lowers theirs temperature to acceptable values. To the moment there is a lack of experimental investigations about the influence of reactor irradiation upon the processes of hydrogen isotopes interaction with copper.

In presented work the examined sample was 0.5 mm thick, 20 mm diameter membrane of oxygen-free copper MOB1 with oxygen content about 10 ppm. The membrane was sealed (with diffusion welding) between two enclosures of ampoule device (see Figure 2), and after that the ampoule was inserted in experimental channel of reactor.

The experimental procedure was as follows: the ampoule device with sample was annealed under constant pump-out of membrane's both sides at certain temperature. Then, while the needed temperature of the copper sample was established, deuterium was filled in the inlet side of ampoule device under the pressure  $10^5$  Pa. The outlet side of the sample was under pump-out and the flow of penetrated through the sample deuterium was registered by mass-analyzer as time dependence dynamics until the flow reaches its stationary level – “break-through curve”. At that time the deuterium from inlet side of the sample was pumped-out while the registration of penetrated deuterium in outlet side continued until it reaches instrumental zero – “pump-out curve”. The procedure of such measurements corresponds to methods described in branch standard [5].

*The experimental conditions in details:*

- Temperature range of copper sample was from 573 to 773 K;
- Residual pressure in measurements path from  $10^{-4}$  to  $10^{-6}$  Pa; Inlet pressure of deuterium  $10^5$  Pa;
- Experiments were carried out at 0.5 MW and 1.0 MW of reactor power.
- Maximum irradiation time for reactor experiments was 10800 s.

As the result of carried out experiments on deuterium permeation through the copper the kinetics of penetrated deuterium flow were registered for copper temperatures from 573 to 773 K. At temperatures about 723 K the effect of reactor irradiation upon the kinetics of deuterium permeation through the copper sample. The effect consists in diffusion stimulation and in not so significant increase of stationary level of permeation flow. This effect became less significant while the sample temperature decrease.

Also the experiments did not show noticeable dose (reactor power) dependencies of deuterium permeation rate. Figure 8 shows that permeation curve obtained at 1 MW reactor power lies some higher above the similar curve obtained at 0.5 MW. But this is not so significant as the difference between in-pile and out-of-pile permeation curves. The difference between the curves for 1 MW and 0.5 MW of reactor power is comparable to measurements accuracy.

As it follows from the analysis of existing literature on out-of-pile experiments on hydrogen isotopes penetration through the copper, one of the processes determining the penetration rate is the interaction of hydrogen with existing in a copper oxygen admixtures (oxides) (and in fractional values with impurities such as arsenic, antimony and bismuth ) [6-10] In mentioned works the examined copper was of both grades: the copper of low purity (ETP-copper, produced with electrolytic method without post-processing and containing 200 ppm of oxygen) and the oxygen-free copper (vacuum copper) with oxygen content about 10 ppm. It was noticed in all cases that the oxygen effect is most likely caused by reversible reaction  $Cu_2O + H_2 \rightarrow 2Cu + 2H_2O$  which by the way is responsible for copper's hydrogen embrittlement.

Such a reaction with oxygen (which occurs while hydrogen isotopes diffuse in bulk metal) was noticed earlier in other metals also (for example in niobium this reaction is one of main processes governing penetration [11, 12]).

The attempts to describe obtained data of deuterium penetration through copper had show that calculated effective coefficients of diffusion derived from penetration curves are much lower than coefficients derived from curves of pump-out. It's related with the fact that rate of hydrogen release from oxygen traps is much lower than the trapping-in process. As follows from mentioned above literature there is a clear opinion that process of hydrogen permeation through the copper should be described with the model of diffusion in defect media (model of McNabb-Foster [13])

McNabb-Foster's model takes into account existing traps of limited capacity and theirs reduction during diffusion process. This approach explains such experimental facts as increased amount of diffusant in membrane in stationary state of permeation, the lack of proportionality between stationary flow  $Jst$  and gas concentration  $C0$  at inlet side, lack of symmetry in sorption and desorption processes, lack of coincidence of “break-through” and “pump-out” curves. The system of differential equations by McNabb-Foster ia as follows

$$\begin{cases} \frac{\partial c}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} - k_1 \left(1 - \frac{m}{m^*}\right) c + k_2 m, \\ \frac{\partial m}{\partial t} = k_1 \left(1 - \frac{m}{m^*}\right) c - k_2 m, \end{cases} \quad (1)$$

where  $m$  – concentration of diffusant (hydrogen) in the traps,  $m^*$ -concentration of traps,  $k_1$ ,  $k_2$  – rates of trapping and release of diffusant from traps.

The temperature dependencies of diffusion coefficients derived from our data using McNabb-Foster model for different stages of experiments are shown on figure 9.

Calculation formulas for permeation and solubility constants were taken from standard method as described in [2].

Obtained final results that are presented in Table 2 show noticeable decrease of activation energy of deuterium diffusion in copper under reactor irradiation. Calculation with McNabb-Foster model show also noticeable decrease of release-from-trap energy and not significant decrease of traps energy under reactor irradiation (within the measurements accuracy range).



TABLE 2. Parameters of processes of deuterium permeation in copper obtained in experiments

Step of the work	Out-of-pile experiment	In-pile experiment (0,5W)	In-pile experiment (1W)
$D_0, \text{m}^2/\text{s}$	$(3,3 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$	$(1,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$	$(2,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-7}$
$E_D, \text{kJ/mole}$	$38 \pm 2$	$30 \pm 2$	$29 \pm 2$
$E_{k1}, \text{kJ/mole}$	$44 \pm 3$	$38 \pm 3$	$38 \pm 3$
$E_{k2}, \text{kJ/mole}$	$69 \pm 3$	$60 \pm 3$	$59 \pm 3$
$S_0, \text{mole/m}^2 \cdot \text{Pa}^{0,5}$	$(2,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-2}$	$(1,5 \pm 0,1) \cdot 10^{-2}$	$(1,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-2}$
$E_S, \text{kJ/mole}$	$27 \pm 2$	$35 \pm 2$	$36 \pm 2$
$P_0, \text{mole/m}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{Pa}^{0,5}$	$(1,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-5}$		
$E_P, \text{kJ/mole}$	$65 \pm 4$		

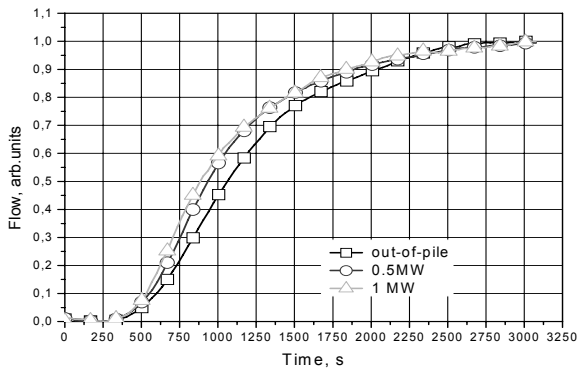


Fig. 8 – Kinetics of deuterium penetration in experiments at temperature 623 K (normalized to maximal flow)

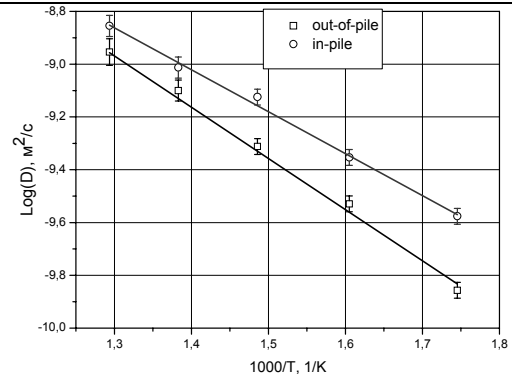


Fig. 9 – Temperature dependencies of deuterium diffusion coefficients for copper calculated with McNabb-Foster model

It is clear from Table 4 that the difference between parameters values calculated from in-pile experiments of two values of reactor power (0,5 MW and 1 MW) coincide within the accuracy range. Trap activation energy and release activation energy -  $E_{k1}$  and  $E_{k2}$ ;  $D_0$ ,  $S_0$  and  $P_0$  – pre-exponential factor in Arrhenius equation for diffusion, solvability and penetration;  $E_D$ ,  $E_P$  и  $E_S$  – activation energy of diffusion, solvability and permeation.

All obtained and presented here parameters of interaction of deuterium with copper under reactor irradiation and the effect of neutron irradiation influence on deuterium permeation through oxygen-free copper are pioneer and important for correct account if tritium migration and dissolution of tritium in structural materials of future FTR during its lifetime.

**Experimental study of interaction of hydrogen isotopes with stainless steel SS316L(N)-IG**

Examined in this work austenitic stainless steel SS316L(N)-IG (ITER Crade) was specially designed for ITER vacuum vessel. It is related to the class of modified materials for ITER. The modification was applied to chemical composition, thermal treatment and ingot’s production technology. Examined sample was the membrane with 21mm diameter and of 0,69 mm thickness.

Experiments were carried out with method of permeation and were conducted in three stages: out-of-pile (before irradiation), in-pile and post-irradiation [15]. The experimental procedure was the same as described above for copper.

*Experimental conditions were as follows:*

- Temperature range was from 623 to 823 K;
- Residual pressure in measurements path from  $10^{-4}$  to  $10^{-6}$  Pa;
- Inlet pressure of deuterium 500 Pa;
- Experiments were carried out at 1.0 MW and 2.0 MW of reactor power.
- Irradiation time for reactor experiments was  $10^3$  s.

As the result of carried out experiments on deuterium penetration through SS316IG stainless steel the kinetics of penetration were registered for different stages of experiment.

The experiments had show that in temperature range 720 - 820 K reactor irradiation does not affect the character of deuterium permeation; at temperatures 620-670 K reactor irradiation significantly changes the permeation process and leads to decrease of permeation flow and increases the time needed to reach stationary value of permeation flow. It means that significant decrease of diffusion and permeability occurs. In our experiments the observed effect of deuterium diffusion-permeability reduction does not depends on reactor power. The post-reactor study had show that thermal anneal of examined sample at 1000 K leads to gradual restoration of hydrogen-steel interaction to initial values. In results of experiments were determined the main parameters of permeation of deuterium through SS316L(N)-IG steel such as: diffusion coefficient, constants of deuterium permeation and solubility. The parameters are shown in Table 3. Calculation formulas were taken from source [5].

Observed effects could be explained as the influence of isolated point defects – so called point traps which are uniformly distributed in the bulk metal. Atom of diffusant stochastically migrating through the metal is trapped with defect where he retains or released to the diffusion zone after some time delay. From other side the traps for hydrogen isotopes arise due to radiation-stimulated segregation of admixtures at grain boundaries. For example the literatures [15, 16] had show in steels that

effect of radiation-stimulated segregation occurs at grain boundaries with nonmetallic admixtures (phosphor, sulfur). Therefore we assume that the concentration of non-metallic admixtures at the grain boundaries increase under irradiation due to radiation-stimulated segregation only to some equilibrium value which does not depends significantly on reactor power. Reactor power in its turn governs the rate with which the grain boundaries are occupied with non-metallic admixtures. Post-reactor annealing of samples used in in-pile experiments at temperatures 620, 670 K leads to recuperation of their initial, out-of-pile values of deuterium penetration because the annealing leads to reverse dissolution of admixtures in the grain body.

TABLE 3. Experimental parameters of deuterium permeation through stainless steel 316L(N)-IG

	Out-of-pile	In-pile	Literature data for D <sub>2</sub> in steel 316L [4]
D <sub>0</sub> , m <sup>2</sup> /s	$(5,9 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$	$(1,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-5}$	$0,6 \cdot 10^{-6}$
E <sub>D</sub> , kJ/mole	55 ± 5	75 ± 7	45
P <sub>0</sub> , mole/(m·s·Pa <sup>1/2</sup> )	$(3 \pm 0,5) \cdot 10^{-7}$	$(1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-6}$	$1,4 \cdot 10^{-7}$
E <sub>p</sub> , kJ/mole	66 ± 7	72 ± 7	64
S <sub>0</sub> , mole/m <sup>3</sup>	(0,5 ± 0,15)	(0,1 ± 0,02)	6,8
E <sub>s</sub> , kJ/mole	11 ± 7	3 ± 7	20

## CONCLUSIONS

Our experimental study had allowed us to measure and evaluate the main parameters of hydrogen isotopes interaction with copper, tungsten and stainless steel 316L(N)-IG. Effective coefficients of diffusion, effective constants of permeability and solubility were calculated. Temperature dependencies were used to derive corresponding activation energies for diffusion, permeation and solubility.

In all in-pile experiments we have registered the effect of radiation influence on measured parameters of hydrogen isotopes interaction with examined materials. In every study the factors which affect the parameters of this interaction are of different nature and are governed with different processes which are specific for each examined material in given conditions.

The results of carried out investigations could be used for estimation of tritium migration and aggregation in structural elements FTR under its operation.

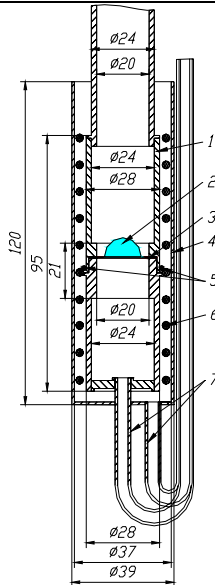
## ACKNOWLEDGMENTS

We would like to express here our gratitude to entire technical staff of IVG1.M reactor for their assistance in investigations presented here.

## REFERENCES

- 1 G FEDERICI, "Plasma-material interactions in current tokamaks and their implications for next step fusion reactors", *"Nuclear Fusion"*, № 41, pp. 1967–2137 (2001).
- 2 N. R. GAL, "Joint adsorption of atoms of aluminium and IV group elements (Si, C) on W (1,0,0)", *"Letters to journal of technical physics"*, V. 39, №19, pp. 72 – 79, (2004).
- 3 N. R. GAL, "Features of carbon segregation on a tungsten surface", *"Physics of a firm body"*, V. 45, №4, pp. 742 – 747 (2003).
- 4 N. R. GAL, "Superficial connections and reactions of nonmetals with refractory metals" *"Russian chemistry journal"*, V. XLVII, №2, pp.13 – 22(2003).
- 5 The branch standard OST 92-4949-84. "Metals. Methods of definition high-temperature hydrogen penetration", p. 40, Standards Publishing House, Moscow, Russia (1986).
- 6 MR LOUTHAN and CASKEY, G. "Hydrogen Transport and Embrittlement in Structural Metals", *"Int J Hydrogen Energy"*, №1, pp. 291–305(1976).
- 7 E. MATTSON and F.SCHUECKHER, "An investigation of hydrogen embrittlement in copper", *"Journal of the Institute of Metals"*, №87, pp. 241–247(1958).
- 8 G.R. CASKEY, "Hydrogen Transport in Copper", «DP-MS-75-6», Savannah River Laboratory, Aiken SC (1975).
- 9 G.R. CASKEY, "The Effect of Oxygen on Hydrogen Transport in Copper", *"Corrosion"*, № 32, pp.370-374(1976)
- 10 J.K. GORMAN, "Hydrogen Permeation through Metals", *"Vacuum"*, №12, pp.19–24(1962).
- 11 P. ZAPP, "Material Science Symposium", "ASM, Detroit, Mich., October 21-24"(1974).
- 12 J. KEISER, "Material Science Symposium", "ASM, Detroit., Mich., October 21-24(1974).
- 13 A. MC NABB and K. FOSTER, "A new analysis of the diffusion of hydrogen in iron and ferrite", *"Trans. of the metallic Soc."*, Vol. 227, pp. 618 – 627( 1963).
- 14 A.O. SADVAKASSOVA and T.V. KULSARTOV, "Definition of basic parameters of deuterium interaction with stainless steel SS316 IG in conditions of reactor radiation", *"Dynamics of research – 2008"*, Vol. 28, pp.97-99(2008).
- 15 K.S. RUSSEL, "Phase Stability under Irradiation", *Progr. Mat. Sci.*, Vol. 28, pp. 229 – 434( 1984).
- 16 V.F. Zelensky, *Some problems of physics of material radiating damages*, 240 p., Research Dumka, Kiev, Ukraine (1979)





1 – Ampoule body , 2- investigated sample, 3 – substructure, 4 – boot of cooling system, 5 - thermocouples, 6 – heater, 7 – tubes of cooling system

Figure 3 – Ampoule with lithium sample

Experimental results are presented on the Figure 4.

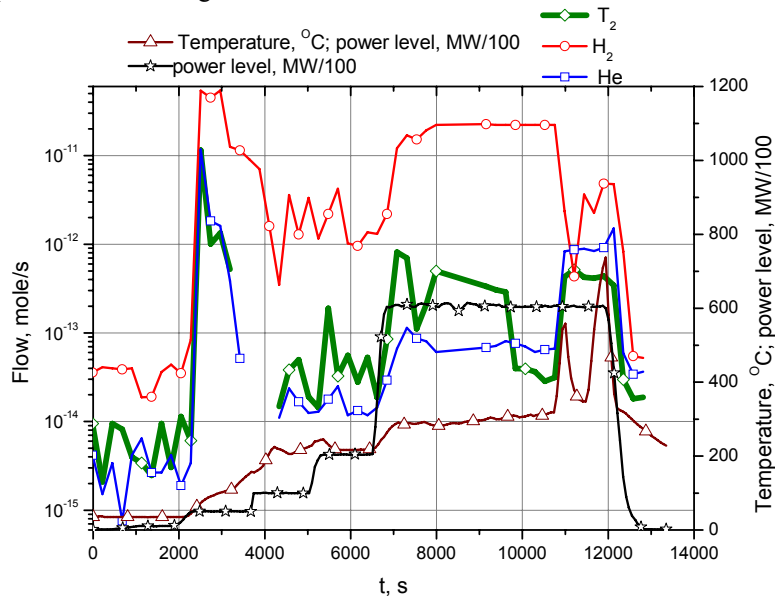


Figure 4 – Dependences of tritium and helium release from lithium sample at reactor irradiation

The received calculated rate values of tritium ( $T_2$ ) and helium (He) generation in the investigated sample equal approximately  $3E-11$  mol/s and  $6E-11$  mol/s accordingly (at reactor power 6 MW). An observable hydrogen isotopes and helium partial pressure history in the chamber during start-stop time can be interpreted as follows: hydrogen peak decrease in the chamber at sample heating (more than 2 order) obtained occurrence of lithium film in the chamber because of lithium dispersion which occurs at temperatures above  $350\text{ }^\circ\text{C}$  and increase of lithium sorbing surfaces which possesses high sorption properties in relation to hydrogen. Simultaneously in experiment increase of tritium and helium pressure was observed at increase of sample temperature that we also link to surface increase of tritium and helium release. It is typical that in the established release mode the tritium- helium fluxes relation corresponding to nuclear reaction  ${}^6\text{Li} (n, \alpha) T$  was observed. Low values of tritium and helium release testify that at current stage of tritium generation there is its effective accumulation in lithium. The lithium release coefficient equals approximately 0,01 for the chosen experimental conditions .

Further it is planned to carry out researches of tritium and helium generation and release from the lithium CPS (capillary porous system) sample for various irradiation conditions.

---

**SOLID SURFACES MODIFICATION AND DIAGNOSTICS  
AT GRAZING LOW-ENERGY ION BOMBARDMENT**
F. F. Umarov<sup>1</sup>, A.A. Dzhurakhalov<sup>2</sup> and K.M. Mukashev<sup>3</sup><sup>1</sup>Kazakh British Technical University, 050000 Almaty, 59, Tole bi str., Kazakhstan<sup>2</sup>Antwerpen University, 2020 Antwerpen, Middelheimlaan 1, Belgium<sup>3</sup>National Pedagogical University after Abai, 050100 Almaty, 13, Dostyk ave., Kazakhstan

The ion implantation process at grazing angles lead to sputtering of the subsurface layers and to change of a profile of composition and structure of further layers [1-3]. The (001) surface of III-V semiconductors is one of the most widely used semiconductor surfaces in both homo- and hetero-epitaxial growth for the manufacturing of electronic devices. Implantation of Be and Se ions into GaAs allows to make the acceptor and donor impurities and ultra shallow junctions in this semiconductor [4]. In the present work the peculiarities of the ion sputtering and ion implantation processes under conditions of low-energy grazing ion bombardment of Cu(001), GaAs(001), GaP(001) and Cu<sub>3</sub>Au(001) surfaces have been investigated by computer simulation. The calculation program used in the present work is similar in structure to the well known MARLOWE program [5]. The trajectories of the colliding particles have been constructed as a sequence of binary collisions. The particle interactions were described by the screened Coulomb potential with the Ziegler-Biersack-Littmark (ZBL) approximation to the Thomas-Fermi screening function [6]. The inelastic energy losses have been considered as local and calculated by modified Firsov model, with their including into the scattering kinematics [3]. Elastic and inelastic energy losses of scattered and sputtered particles were summed along their trajectories. For consideration of possible simultaneous collisions of ions with several target atoms the procedure proposed by Robinson and Torrens [5] was used. The simulations were run with the crystal atoms initially stationary at equilibrium lattice sites because in the conditions of grazing incidence the influence of the thermal vibrations of lattice atoms at room temperature on ion scattering and sputtering results is insignificant.

The sputtering has been simulated in the primary knock-on regime. Only the primary knock-on recoil (PKR) atoms ejected from first, second and third layers have been considered. The presence of a planar potential energy barrier with a height  $U_s = 3.5\text{eV}$  on the surface was taken into account. The number of incident ions is  $2 \times 10^4$ . The incident ions and the recoil atoms were followed throughout their slowing-down process until their energy falls below a predetermined energy: 25 eV was used for the incident ions, and the surface binding energy was used for the knock-on atoms. The angle of incidence of the ion beam relative to the surface was changed in the range  $\psi = 3 - 30^\circ$ , the azimuth angle of incidence changed in the range  $\xi = 0 - 90^\circ$  by rotation of a target around its normal was counted from  $\langle 100 \rangle$  direction, the polar and azimuth angle of ejection of desorbed particles are marked in  $\delta$  and  $\phi$ , respectively. The scattering geometry and scheme of a semichannel on the Cu(100) face along the  $\langle 110 \rangle$  direction and the target area on it are shown on Fig.1. The polar scattering angle  $\theta$  was counted from the primary beam direction, the polar escape angle  $\delta$  – from the target surface and the azimuthal scattering angle  $\phi$  – from the incidence plane.

The total and partial sputtering coefficients of 5 keV Ar ions implanted into Cu(001) surface and 1 keV Se and 5 keV Ne ions implanted into GaAs(001), GaP(001) and Cu<sub>3</sub>Au(001) surfaces for a range of grazing angles of incidence ( $3-30^\circ$ ) have been calculated and presented. In Fig. 2 the total primary knock-on recoil (PKR) yields subdivided into sputtering by first three surface layers versus the grazing angle of incidence  $\psi$  for 1 keV Se ions bombarding of GaAs(001) surface are shown. At sufficiently small grazing angles ( $\psi < 12^\circ$ ) the sputtering processes do not take place due to impossibility of ion penetration through surface. At  $\psi > 12^\circ$ , with increasing  $\psi$  the number of PKR at first rises, achieves its maximum and then decreases.

This decreasing of PKR yields is explained by partial penetration of ions in deeper layers and domination of the cascade sputtering mechanism. It is clear that the relative contributions of each layer to the total PKR yield strongly depend on the angle of incidence. In the all calculated angular range the contribution of PKR from first layer are dominant over ones from second and third layers and in the angular range  $12^\circ < \psi < 20^\circ$  the surface atoms are only ejected. These results show that the optimum for layer-by-layer sputtering of single crystal surface are observed within the small angle range of the glancing angles near the threshold sputtering angle.

It was shown that the formation of recoil atoms at grazing ion incidence beam on an ideal atomically smooth surface of a single crystal promotes its layer-by-layer sputtering. In conditions of layer-by-layer sputtering it is possible to achieve successive removal of layers without disturbance of the next layer at removal of the previous one [7].

In Fig.3 the dependencies of the components partial sputtering coefficients for GaP(001) surface at bombardment by Ne<sup>+</sup> ions with  $E_0 = 5\text{keV}$  along the  $\langle 110 \rangle$  direction are presented. Crystal structure of GaP is the same as for GaAs: atoms of each component are located layer-by-layer in (001) planes: Ga atoms located in first and third and P atoms – in second and fourth layers. In calculation the superficial layer cutting is taken into account, i.e. the GaP(001) surface is considered as completed either by Ga or by P atoms (at complete deletion of superficial layer). Partial sputtering coefficients are averaged for these two cases. It should be noted that the partial sputtering coefficients for Ga and P atoms calculated from total contribution of atoms knocked-out from first three layers. It can be seen, that in the incidence angle range  $5^\circ < \psi < 10^\circ$  despite of greater mass of Ga atoms their averaged escape is appreciably greater than escape of P atoms.

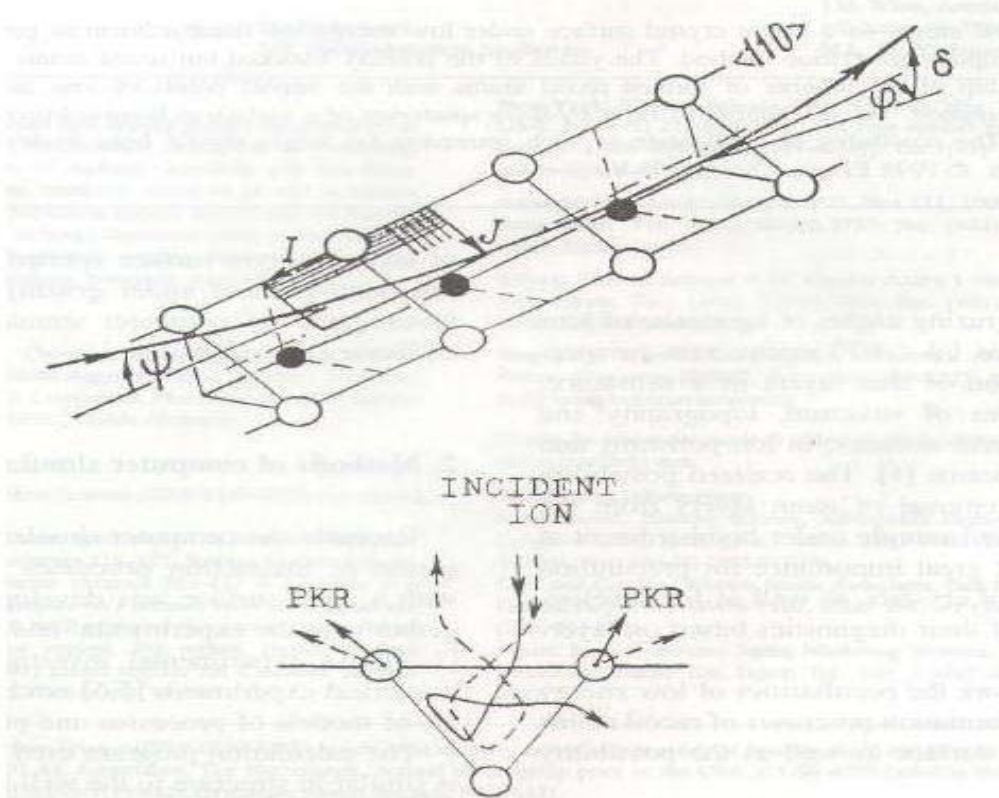


Fig.1. The scattering geometry and scheme of a semichannel on the Cu(100) face along the  $\langle 110 \rangle$  direction and the target area on it. I and J are the coordinates of the impact points along and transverse of the semichannel axis respectively, determining the number of incident ions. Bottom, the schemes of PKR atoms formation at grazing incidence angles (in transverse plane)

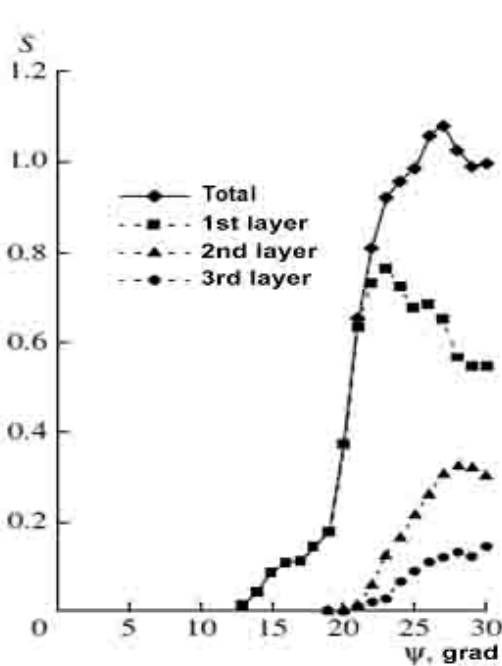


Fig.2. Total PKR yields subdivided into sputtering by first, second and third surface layers versus the grazing angle of incidence  $\psi$  for 1 keV  $\text{Se}^+$  ions bombarding of GaAs(001) $\langle 110 \rangle$  surface

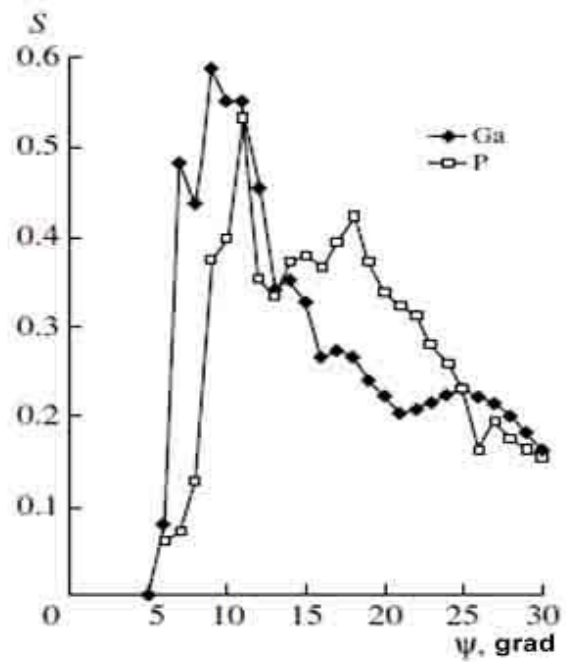


Fig.3. The partial sputtering coefficients of GaP(001) surface at bombardment by  $\text{Ne}^+$  ions with  $E_0 = 5\text{keV}$  along  $\langle 110 \rangle$  direction. The number of impinging ions is  $10^4$

Thus, contrary to the well-known conceptions about preferential sputtering the preferential sputtering of most heavy component is observed. It may lead to enrichment of surface by atoms of light component – P atoms. But in the  $\psi > 11^\circ$  range the P atoms escape in accordance with conventional conceptions is dominated over Ga atoms escape.

Above considered GaP(001) surface consist of the one component atoms (Ga or P atoms). Therefore, it is interesting to consider the behavior of partial sputtering coefficients when the surface are contain both components. We consider the Cu<sub>3</sub>Au(001) surface sputtering. The volume content of this alloy is corresponded to 75% atomic concentration of Cu and 25% atomic concentration of Au. The content of (001) face corresponded to equal concentration of both components: 50% Cu and 50% Au atoms. Thus, the superficial and third layers are consisted from Cu and Au atoms, second and fourth layers – from Cu atoms only.

In Fig.4 the dependencies of the components partial sputtering coefficients for Cu<sub>3</sub>Au(001) surface at bombardment by Ne<sup>+</sup> ions with E<sub>0</sub> =5keV along the <110> direction are presented. One can see that in the incidence angles range 6° <ψ<14° partial sputtering coefficients for Au and Cu atoms differ slightly but at ψ>14° noticeable dominance of Cu atoms escape is observed. It should be noted that in partial sputtering coefficient of Cu atoms make a contribution atoms knocked out both from superficial and second layer. Thus, practically in all incidence angles range Cu atoms dominance is observed. But, comparison of partial sputtering coefficients for atoms knocked out from superficial layer only show that in the incidence angles range 10° <ψ<14° Au atoms escape predominate despite of their greater mass in comparison with Cu atoms mass. It stipulated by structure of atomic rows in <110> direction which consist of alternate Au and Cu atoms. Thus, in semichanneling conditions the incidence ions transfer their energy to Au atoms generally and Cu atoms are remained in Au atoms shadow. Thus, in grazing bombardment conditions through size effect influence Au atoms the mass of their significantly greater than Cu atoms mass have even escape as the Cu atoms.

The mentioned results show that preferential sputtering of one or another component at grazing bombardment of single crystal surface is determined by incidence angle value. It is shown that further to previously existing conceptions about preferential sputtering reasons the crystallographic direction and incidence angle value appear of considerable factors of its appearance too. In grazing bombardment conditions the preferential sputtering of heavy component atoms it is possible.

On the basis of revealed optimal conditions using computer simulation for layer-by-layer sputtering of the single crystal surface at grazing low energy ion bombardment the method of layer-by-layer quantitative analysis of crystalline solids was proposed. The goal of the proposed method is improvement in accuracy and sensitivity in determining impurity concentration distribution in crystalline solid. According to the proposed method, which includes layer-by-layer sputtering of the target with the following mass-analysis of the secondary particles, this goal is achieved by preliminary surface sputtering at the grazing incidence angle range ψ = 3÷10°, counted off the surface of the target, by ions with energy, part of which corresponding to the normal component of their velocity is lower than the threshold of sputtering of atoms of the target surface. This means that E<sub>i</sub>sin<sup>2</sup>ψ<sub>i</sub><E<sub>d</sub>, where E<sub>i</sub> is the ion energy before the ith collision, ψ<sub>i</sub> is the angle between the ion movement direction and the semichannel axis before the ith collision, E<sub>d</sub> is energy of displacement of atoms of a second layer. During the sputtering process the target is uniformly rotated around the axis, which is normal to the sputtering surface. This allows to determine the impurities concentration in equal conditions both in the lattice and in the interstitial sites. Mass analysis of sputtered impurities are realized in azimuthal angular range φ = 85 ±5° relatively to the ions scattering plane after the roughness height becomes R<sub>Z</sub> < 0,05micron.

With glancing angles of incidence of primary beam the ions are scattered in a specular direction (θ = 2ψ) with respect to the incidence beam, i.e. they are separated by space from the PKR, escaping in the direction approximately perpendicular to the axis of closed packed atomic rows of surface. As a result the signal-to-noise ratio increases, causing the increase in the sensitivity of the analysis. The calculated energy and spatial distributions of the PKR are presented on Fig.5. One can see that the main part of the PKR possesses the energy of approximately 1eV, and spectrum width at the bottom is about 4eV.

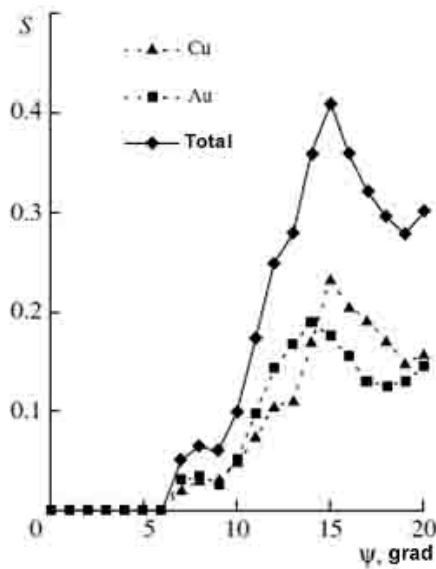


Fig.4. The partial sputtering coefficients of Cu<sub>3</sub>Au(001) surface at bombardment by Ne<sup>+</sup> ions with E<sub>0</sub> =5keV along <110> direction. The number of impacting ions is 10<sup>4</sup>.

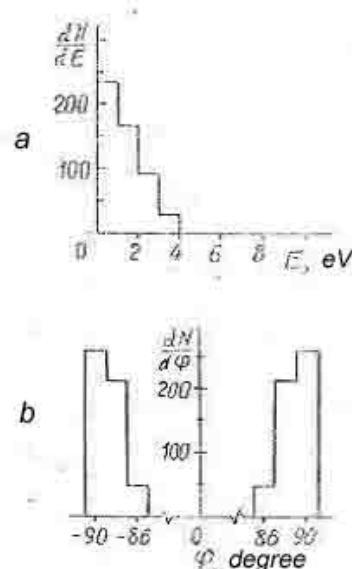


Fig. 5. Energy (a) and spatial (b) distributions of primary knocked recoils at grazing bombardment by Ar<sup>+</sup> ions the Cu(100)<110> surface with E<sub>0</sub> = 7keV and ψ = 5°.



Thus, by locating the mass-analyzer perpendicular relatively to the beam incidence plane ( $\varphi = 85 \pm 5^\circ$ ), we increase an analysis sensitivity since the recoil atoms have a low energy with small spread. It enabled us to ionize them effectively by electron beam impact from external source located near the target. The target in the process of layer-by-layer sputtering is uniformly rotated around an axis which is normal to the surface. This allows determining in equal conditions the impurities concentration both in lattice and in the interstitial sites.

Thus, the proposed mechanism of layer-by-layer sputtering of a single crystal surface at bombardment under grazing angles, opening possibilities for layer-by-layer analysis of crystal solids with high sensitivity.

It is shown that further to previously existing conceptions about preferential sputtering reasons the crystallographic direction and incidence angle value appear of considerable factors of its appearance too. In grazing bombardment conditions the preferential sputtering of heavy component atoms it is possible.

#### References

1. E.S. Mashkova (Ed.) Fundamental and Applied Aspects of Sputtering of Solids, Mir, Moscow, 1989 (in Russian).
2. V.I. Shulga, Radiation. Effects. 82 (1984) 169.
3. E.S. Parilis, L.M. Kishinevsky, N. Yu. Turaev, B.E. Baklitsky, F.F. Umarov, V.Kh. Verleger, S.L. Nizhnaya and I.S. Bitensky, Atomic Collisions on Solid Surfaces, North-Holland, Amsterdam, 1993.
4. A.A. Dzhurakhalov, F.F. Umarov, Computer Simulation of Ion Implantation at Grazing Ion-Surface Interactions, IEEE (2000) 323.
5. M.T. Robinson, I.M. Torrens, Phys.Rev. B9 (1974) 5008.
6. D.J. O'Connor, J.P. Biersack, Nucl. Instr. Meth. B15 (1986) 14.
7. F.F. Umarov, A.A. Dzhurakhalov, N.A. Teshabaeva, Formation of recoil atoms and layer-by-layer sputtering of the single crystal surface under ion bombardment at grazing angles, Applied Surface Science 125 (1998) 221.

## АВТОЛОКАЛИЗАЦИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ И ГАММА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ ИТТРИЙ-СКАНДИЙ-ГАЛЛИЕВОГО ГРАНАТА

Курбанов А.М.

*ИЯФ АН РУз, г. Ташкент, Узбекистан*

Кристаллы со структурой граната хорошо известны как активные среды для квантовых оптических генераторов [1]. Кристаллы со структурой граната также широко применяются в качестве твердотельных люминесцентных дозиметров [2], сцинтилляторов [3] и люминесцентных детекторов ионизирующих излучений [2], эффективных люминофоров для катодных трубок [3].

Исследованию электронных возбуждений и дефектов в кристаллах иттрий-скандий галлиевого граната  $Y_3Sc_2Ga_3O_{12}$  (ИСГГ) уделяется большое внимание в связи с исключительной важностью этих диэлектриков для современной техники. Кроме практически необходимого изучения в этих кристаллах различных ростовых и стабильных радиационных дефектов принципиальное значение имеет исследование короткоживущих дефектов, образующихся в результате релаксации и локализации (или автолокализации) собственных электронных возбуждений.

Релаксированные электронные возбуждения удобно изучать люминесцентными методами. Люминесцентное исследование, проведенное в данной работе, позволило наблюдать в кристаллах  $Y_3Sc_2Ga_3O_{12}$  релаксированные электронные возбуждения.

Собственная УФ люминесценция, возбуждаемая ионизирующим излучением в различных редкоземельных гранатах, более или менее систематически исследовалась до сих пор лишь в ( $Y_3Al_5O_{12}$ ) ИАГ, наиболее практически важным и доступным представителем этого обширного семейства. В данной работе в рамках сравнительного исследования разных гранатов изучалась люминесценция, возбуждаемая гамма лучами в неактивированных кристаллах ИСГГ. Кристаллы ИСГГ выращены по методу Чохральского в атмосфере азота содержащей 3,5-5 об % кислорода.

Возбуждение люминесценции осуществлялось гамма-лучами источника  $Co^{60}$  мощностью 500 Р/с. Гамма люминесценция (ГЛ) в спектральной области 300-1000 нм регистрировалась на специально разработанной установке, собранной на базе монохроматора SPM-2 и фотоумножителя ФЭУ 100. Температурные зависимости интенсивности люминесценции различных полосах ГЛ регистрировались в режиме нагрева в температурном интервале 77-300 К. Термостимулированная люминесценция (ТСЛ) регистрировалась интегрально в области 200-800 нм в диапазоне 100-600 К при скорости нагрева 0,23 К/с. Оптическое поглощение облученных образцов снималось на спектрофотометре Specord M-40 в спектральном диапазоне 300-900 нм интервале 77-300 К.

Спектры гамма люминесценции (ГЛ) приведены на рис. 1. При 80К спектр состоит из широкой полосы с максимумом при 300нм. Повышение температуры вызывает смещение максимума в сторону больших длин волн. Изменение спектров ГЛ с температурой в ИСГГ сходно с теми, которые наблюдались в ИАГ [4-7] и вызваны, очевидно, такой же причиной- неэлементарностью полосы ГЛ, которая в действительности состоит из нескольких перекрывающихся полос, различающихся температурными зависимостями.



Температурные зависимости стационарной ГЛ на 300 нм и 370 нм приведены на рис.2. В интервале температур 100-300 К происходит ослабление коротковолновой составляющей ГЛ при одновременном усилении длинноволновой, которая в свою очередь тушится при  $T > 350$  К.

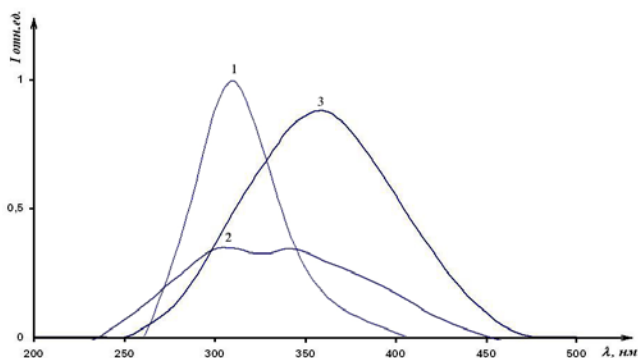


Рис. 1 - Спектр гамма -люминесценции кристаллов ИСГГ: 1 - при  $T \leq 160$  К; 2 - при  $160 < T < 200$  К; 3 - при  $T \geq 280$  К.

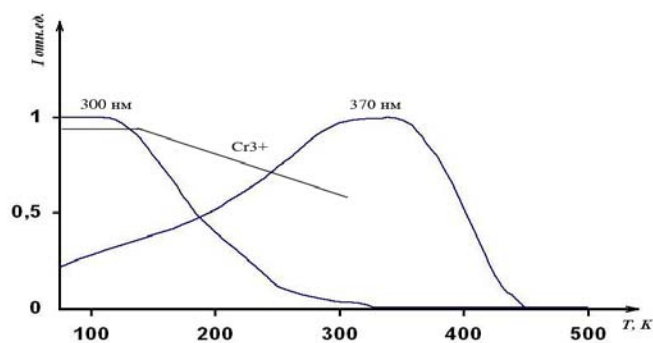


Рис. 2 - Температурные зависимости  $\gamma$ -люминесценции кристаллов ИСГГ - неактивированных и ИСГГ :  $Cr^{3+}$

Кривая ТВ исследуемого образца представлена на рис.3, где наблюдаются 2-3 характерных перекрывающихся пика ТВ (160,280 и 360К).

На рис. 4 приведены спектральные составы ТСЛ кристалла ИСГГ. В спектре свечения пика 160 К содержится широкая полоса люминесценции с максимумом 300 нм. В области температур  $160 < T < 280$  К, соответствующих затуханию первого пика и разгоранию следующего, появляется еще одна широкая полоса свечения с максимумом 370 нм. При температурах выше 280 К наблюдается только полоса люминесценции с максимумом 370 нм.

На рис. 5 приведены спектры наведенного поглощения гамма облученных при 77 К кристаллов ИСГГ. Спектры в кристаллах ИСГГ гамма облученных при 77К наблюдается широкая бесструктурная полоса поглощения с максимумом 640 нм. После отжига до первого пика в спектрах исчезают полосы поглощения с максимумом 640 нм и наблюдается наведенное поглощение как при гамма облучении при температура 300 К.

Приведенные данные показывают, что в кристаллах ИСГГ, так же как ИАГ, полоса собственного свечения состоит из нескольких полос. В кристаллах ИАГ попытки разложения спектра собственного свечения на элементарные составляющие дали у различных авторов разные результаты: различаются и количество (2-5) и положения отдельных полос [4-7]. Поскольку процедура разложения содержит элемент произвола, мы не пытались точно выделить элементарные полосы в сложной полосе ГЛ в ИСГГ, ограничившись ее грубым разделением на две компоненты коротковолновую 300 нм и длинноволновую 370 нм, считая их аналогичными двум компонентам 4,7 эВ и 4,2 эВ на которые была разделена полоса катодолюминесценции в ИАГ в [5].

В спектре ГЛ (рис. 1) наблюдается широкая ассиметричная полоса свечения, максимум которой сдвигается от 300 нм до 370 нм при повышении температуры от 77 до 300 К. Антисимбатный характер температурных зависимостей интенсивности ГЛ (рис.2) при 300 нм и 370 нм указывает на их принадлежность двум центрам рекомбинации. Похожая ассиметричная полоса свечения присутствует и в спектрах ТСЛ в температурном интервала 160-280 К, соответствующем пику термовысвечивания. В области  $T < 160$  К наблюдается полоса свечения при 300 нм, в то время как при более высоких температурах, вплоть до 280 К, преобладает полоса при 370 нм. Полоса люминесценции при 300нм возбуждается во всех исследованных кристаллах независимо от присутствия дефектов, и представляется типичной для кристаллов ИСГГ. Одновременно с тушением ТСЛ при 300 нм обесцвечивается широкая полоса поглощения при 640 нм (рис. 5,4). Эта полоса поглощения, гамма наведенная при 77 К типична для кристаллов ИСГГ и по-видимому, имеет дырочную природу. Исходя, из этих данных можно предположить, что она характерна для решетки граната, и связана с дыркой локализованной на двух соседних ионах кислорода в виде  $O_2^{3-}$  иона как это было показано в работе [8] в кристаллах ИАГ. В пользу дырочной природы этой полосы поглощения свидетельствует её не проявление гамма облученных при 77 К в кристаллах ИСГГ активированных ионами  $Cr^{3+}$ . В кристаллах ИСГГ-  $Cr^{3+}$  после гамма облучения при 77 К наблюдается полоса поглощения с максимумом 480 нм соответствующей полоса поглощения  $Cr^{4+}$  которая установлена в рабатеом [9-11].

Наблюдаемая коротковолновая полоса ГЛ с максимумом 300 нм (рис.1) представляется естественным предположить как автолокализованный экситонном механизм ее возбуждения, поскольку наблюдение в спектральном составе ТСЛ (рис.4) указывает на то, что соответствующий центр свечения имеет рекомбинационный характер. По-видимому, имеет место и рекомбинация электронов с  $O_2^{3-}$ -центрами. Необходимо отметить, что коротковолновую полосу с максимумом 300нм при  $T > 80$  К до сих пор не наблюдали в спектрах ТСЛ. Можно предположить, как это было сделано для полосы 270 нм в ИАГ [5], что полоса 300 нм в ИСГГ принадлежит автолокализованному экситону (АЛЭ). С этой моделью согласуется тот факт, что при низких температурах, когда не вмешивается тепловое освобождение автолокализованных дырок, спектр ГЛ определяется почти исключительно полосой 300 нм, т.е. у этих  $O_2^{3-}$ -центров произведение сечения захвата на концентрацию во много раз больше, чем у других непотушенных центров. Очевидно, что концентрация  $O_2^{3-}$ -центров при автолокализации на 2-3 порядка больше концентрации дефектов, и это говорит в пользу модели АЛЭ, хотя, конечно не доказывает ее, поскольку сечения остаются неизвестными. В отличие от

полосы 300 нм полоса 370 нм явно принадлежит центру, который в процессе возбуждения ионизуется, причем освобожденные электрон или дырка перед рекомбинацией захватываются другим дефектом.

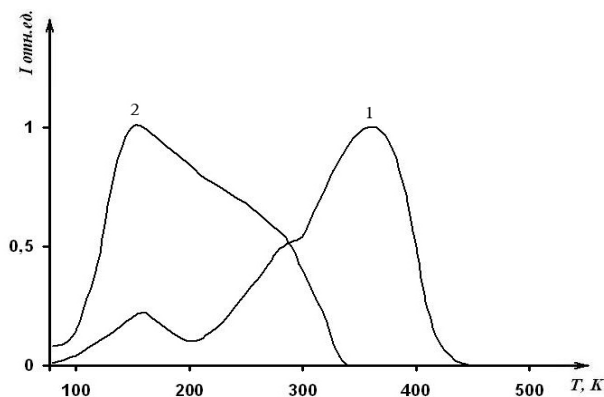


Рис. 3 – Кривые термовысвечивания кристаллов ИСГТ. 1 – неактивированный,  $\gamma$ -облученный при 77 К; 2 – активированный хромом  $\gamma$ -облученный при 77 К;

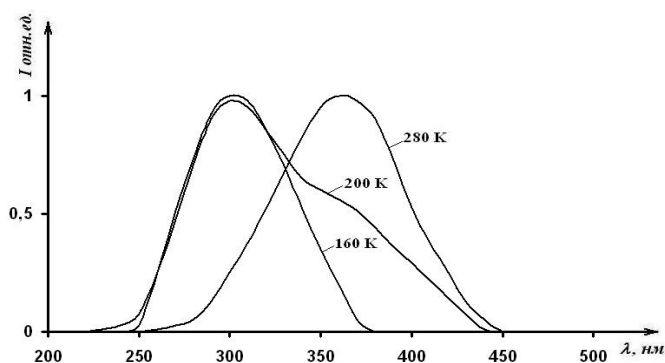


Рис. 4 - Термостимулированная люминесценция  $\gamma$ -облученных при 77 К дозой  $10^6$  Р кристаллов ИСГТ.

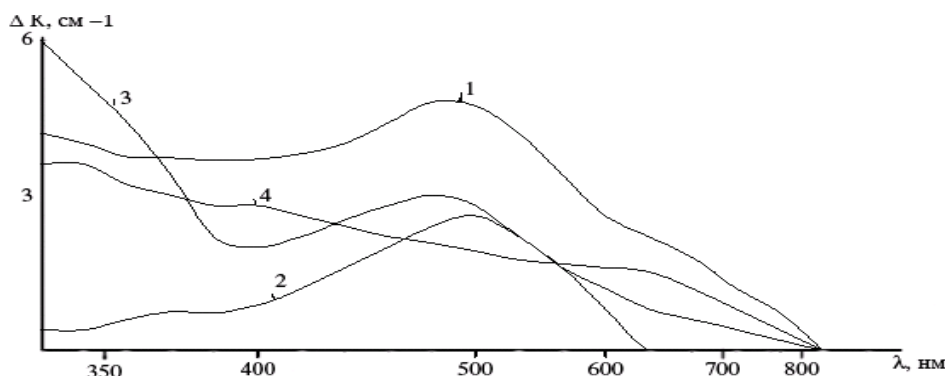


Рис. 5 – Спектры гамма наведенного поглощения кристаллов ИСГТ: 1 – неактивированный,  $\gamma$ -облученный при 77 К; 2 – после отжига до 140 К; 3 – активированный хромом  $\gamma$ -облученный при 77 К; 4 – Разностной спектр 1- 2.

Спектральные составы гамма- и термо- люминесценции и их температурное поведение идентичны, что указывает на единую природу полос свечения в обоих процессах. Антисимбатный характер температурных зависимостей полос 300 -370 нм в области 100-300 К позволяет предполагать, что температурное тушение коротко волновой составляющей вызвано не внутрицентровыми безызлучательными переходами, а возможно делокализацией автолокализованных в регулярной решетке дырок. В результате рекомбинации электронов с автолокализованными дырками образуется экситоно-подобное автолокализованное состояние, излучательный распад которого обуславливает коротковолновое свечение в гранатах. С повышением температуры дырки делокализуются, что приводит к снижению собственной люминесценции. В тоже время увеличение интенсивности 370 нм возможно связано с рекомбинацией делокализованных дырок с электронным центром.

С точки зрения процессов передачи энергии возбуждение  $\text{Cr}^{3+}$  ионов при большой концентрации резко отличается от возбуждения свечения  $\text{Nd}^{3+}$  ионов. При достаточно большой концентрации ( $5 \cdot 10^{19}$  до  $3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ) выход активаторной ГЛ  $\text{Cr}^{3+}$  в области температур автолокализации дырок интенсивнее чем, по сравнению с температурой делокализации дырок. Это явление объясняется тем, что при больших концентрациях хрома полоса поглощения обусловленная автолокализованными дырками отсутствует и наблюдается интенсивная полоса поглощения с максимумом 480 нм соответствующая полосе поглощения  $\text{Cr}^{4+}$ -центр, которая стабильна до температуры 150 К (рис. 5). С повышением температуры  $T > 150$  К  $\text{Cr}^{4+}$ -центр нестабильный, по этому наблюдается спад интенсивности люминесценции с максимумом 740 нм, соответствующий люминесценции  $\text{Cr}^{3+}$ -центра (Рис.2). Исходя из этих результатов можно заключить, что с повышением концентрации активатора ( $\text{Cr}^{3+}$ ) вероятность захвата горячей дырки при  $T < 150$  К активаторным центром растет. При захвате горячей дырки образуется  $\text{Cr}^{4+}$ -центр, что подтверждается появлением полос поглощения с максимумом 480 нм и возбуждение люминесценция  $\text{Cr}^{3+}$  происходит по схеме  $\text{Cr}^{3+} + h \rightarrow \text{Cr}^{4+} + e^- \rightarrow (\text{Cr}^{3+})^* \rightarrow \text{Cr}^{3+} + h\nu_{740 \text{ нм}}$ . Исходя из этих можно предположить, что в кристаллах ИСГТ, активированных  $\text{Cr}^{3+}$  возбуждение люминесценции активатора происходит по прямой ионизации примеси с последующей рекомбинацией на них.

Таким образом можно предположить, что коротковолновая составляющая полосы ГЛ с максимумом 300 нм связана с аннигиляцией электрона с автолокализованной дыркой, образуя автолокализованное экситоно- подобное

состояние. С повышением температуры при температуре больше температуры делокализации, дырка делокализуется и рекомбинирует с электронным центром.

При термическом возбуждении образование автолокализованного экситоно-подобного состояния связано с рекомбинацией электрона, делокализуемого из мелкой ловушки с автолокализованной дыркой. Для кристаллов ИСГГ в спектрах ТСЛ полоса люминесценции с максимумом 300нм обнаружено впервые.

#### **Литература**

1. Каминский А.А.. Лазерные кристаллы. / М: «Наука» - 1975 –с.
2. Сокульская Н.Н.. Синтез и исследование гранатов РЗЭ и алюминия для светоизлучающих диодов.//Дис... канд. хим. Ставрополь -2004 – 140 с.
3. Аверкин В.В., Валбис Я.Ф., Григорян А.Х. и др. Люминесценция кристаллов на основе сложных окислов элементов третьей группы. / В кн.: «Люминесцентные приемники и преобразователи ионизирующего излучения». Новосибирск, «Наука», 1985, С.102-106.
4. Robbins D.J., Cockayne B., Lent B., Timoshechkin M.I., Zharikov E.V. Investigation of comparative recombination processes in rare-earth activated garnet photosp hars. // Phus. Rev. B. 1978. V.19. N 2. P. 1254-1269.
5. Кузнецов А.И., Намозов Б.Р., Мюрк В.В. Релаксированные электронные возбуждения в  $Al_2O_3$ ,  $Y_3Al_5O_{12}$ , и  $YAlO_3$ .// ФТТ. 1985, Том 27, в.10, Стр. 3030-3037.
6. Батыгов С. Х., Воронько Ю.К., Маргиани Н.Г. и др. Рентгенолюминесценция иттрий-галлиевого граната. // Оптика спектроскопия, 1989. Том 67, В.3, стр.614-618.
7. Рыскин Н.Н. Рекомбинационная люминесценция монокристаллов галлиевых и алюминиевых гранатов: //Автореф. дис. к.ф.-м.н. –М., 1991. -21с.
8. Нуридинов И. Электронные возбуждения и радиационно-стимулированные явления в двойных окисных кристаллах системы  $Y_2O_3-Al_2O_3-TR_2O_3-SiO_2$ : // Дис. на соискание уч. степ. канд. физ.- мат. наук. Ташкент 1981. – 144 с.
9. Ashurov M.Kh., Rakov A.F., Amonov M. and Kurbanov A.M.. Radiation Stimulated Color Centers and Recombination Luminescence in Garnet Crystals. //Узбекский физический журнал. -1998. № 2 , стр. 36-41.
10. Курбанов А.М.. Радиационные центры окраски и рекомбинационная радиолуминесценция в кристаллах со структурой граната.// Автореф. На соискание ученых степень канд. Физ.мат. наук Ташкент 1993, 21 с.
11. Крутова Л.И., Кулагин Н.А., Сандуленко В.А. и др. Электронное состояние и позиции ионов хрома в кристаллах граната. // ФТТ. -1999. – Т.31, в. 7, - С.170-17

## **АВТОМАТИЗИРОВАННЫЕ СИСТЕМЫ РАДИАЦИОННОГО И РАДИАЦИОННО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО КОНТРОЛЯ РАДИАЦИОННО-ОПАСНЫХ ОБЪЕКТОВ**

Нурлыбаев К.

*НПП «Доза», Москва, Российская Федерация*

Система обеспечения радиационной безопасности в РФ состоит из следующих подсистем:

1. контроль в радиационно-опасных объектах (РОО) осуществляемый объектовыми автоматизированными системами радиационного контроля (объектовые АСРК);
2. контроль радиационной обстановки в санитарно-защитной зоне и зоне наблюдения РОО осуществляемый объектовыми автоматизированными системами контроля радиационной обстановки (объектовые АСКРО);
3. контроль радиационной обстановки на территориях расположения РОО осуществляемый территориальными автоматизированными системами контроля радиационной обстановки (территориальные АСКРО);
4. контроль перемещения ядерных материалов и радиоактивных веществ (ЯМ и РВ) через границы.

Объектовые АСРК созданные с появлением первых РОО постоянно совершенствуются и ведут не только радиационный, но и технологический контроль. Например, в 2004г. НПП «Доза» совместно с ВНИИАЭС на ВдАЭС введена в эксплуатацию первая российская автоматическая система контроля протечек из первого контура во второй путем измерения активности радионуклида  $N^{16}$  в воде второго контура.

Соблюдение жестких требований по контролю выбросов и сбросов привело к созданию автоматизированных систем непрерывного контроля выбросов радиоактивных аэрозолей, инертных радиоактивных газов и йода РОО в атмосферу. Создается автоматизированная система контроля и учета радиоактивных отходов (АСКРАО).

Первые объектовые АСКРО АЭС созданы НПП «Доза» 1999-2001 гг. вокруг 8-ми российских АЭС с передачей данных по УКВ-радиоканалу. Данные от АСКРО АЭС выводятся в Ситуационно-кризисные центры (СКЦ) концерна «Росэнергоатом» и ГК «Росатом».

В связи с разворачиванием планов строительства новых энергоблоков АЭС для информирования общественности о реальной радиационной обстановке на территориях расположения РОО созданы территориальные АСКРО. Повсеместное развитие сетей сотовых связей обеспечивает передачу данных АСКРО по сети GSM/GPRS и приводит к существенному снижению стоимости АСКРО. Информация о радиационной обстановке с объектовых и территориальных АСКРО в режиме реального времени выводится на сайт [www.russianatom.ru](http://www.russianatom.ru) поддерживаемый ИБРАЭ РАН. Данное мероприятие обеспечило снижение радиофобии в обществе и привело к спаду протестов против

строительства новых ЭБ АЭС. В состав АСКРО входят передвижные лаборатории с установками радиационной разведки «Гамма-сенсор» работающими в АСКРО в режиме реального времени.

Подсистема контроля перемещения ядерных материалов и радиоактивных веществ (ЯМ и РВ) через границы создавалась в рамках международных обязательств РФ и трудно судить об ее эффективности.

В рамках программ «Антитеррор» и «Безопасность на транспорте» начинается дорогостоящее бессистемное развертывание систем радиационного контроля мест массового пребывания людей, таких как метрополитен, вокзалы, эффективность которых нулевая или даже отрицательная, т.к. гарантированные массовые ложные срабатывания приведут в будущем к их отключениям. Гораздо дешевле и эффективным путем было бы оснащение персонала объектов дешевыми персональными сигнализаторами.

Существует несколько проблем препятствующих дальнейшему эффективному развитию систем обеспечения ядерной и радиационной безопасности (ЯРБ).

#### **Первая проблема - отсутствие стандартов.**

В настоящее время в области средств контроля ЯРБ действуют следующие стандарты СССР:

- ГОСТ 27451-87 Средства измерений ионизирующих излучений Общие технические условия
- ГОСТ 25935-83 Приборы дозиметрические Методы измерения основных параметров
- ГОСТ 25851-83 Приборы радиометрические Методы измерения основных параметров
- ГОСТ 24281-80 Блоки детектирования ионизирующих излучений Общие технические требования
- ГОСТ 17226-71 Измерители мощности экспозиционной дозы рентгеновского и гамма-излучений с энергией квантов от 8 до 480 фДж Технические требования
- ГОСТ 28271-89 Приборы радиометрические и дозиметрические носимые Общие технические требования и методы испытаний
- ГОСТ 15546-73 Приборы дозиметрические Типы и основные параметры
- ГОСТ 15547-78 Приборы радиометрические Типы и основные параметры

Вышеприведенные стандарты по средствам контроля ЯРБ неполны и устарели. В них:

- отсутствуют четкие требования к техническим и эксплуатационным характеристикам средств
- отсутствуют методы испытаний по многим параметрам
- имеющиеся в них требования не соответствуют требованиям международных стандартов.

Основополагающий стандарт:

ГОСТ 27451-87, Средства измерений ионизирующих излучений, Общие технические условия, 1989 распространяется на все типы средств: дозиметры гамма-, рентгеновского и нейтронного излучений; альфа- и бета-радиометры; гамма- и альфа-спектрометры; на носимые, переносные и стационарные средства и другие средства контроля РБ и вследствие этого:

- не предъявляет требования к характеристикам специфичным и критичным для конкретного типа средств измерения;
- не приводит методов испытаний

ГОСТ не различает понятия «погрешность средства измерения» и «погрешность результата измерения»

Необходима разработка новых стандартов на основе международных стандартов в первую очередь на основе стандартов Технического комитета ТК 45 «Ядерное приборостроение» Международной электротехнической комиссии (МЭК - IEC).

ТК 45 имеет следующие подкомитеты:

- ПК45А «Аппаратура для контроля и управления ядерными объектами»
- ПК45В «Приборы радиационной безопасности»

В некоторых случаях (метрология, контроль критического состояния) полезны также стандарты ИСО (ISO) - Международной организации по стандартизации.

В МЭК процедура разработки стандартов многоступенчатая:

- NP - предложение о включении в план новой темы, решение принимается на основании результатов голосования национальных комитетов;
- WD - над проектом документа работают эксперты рабочей группы;
- CD - документ после рассмотрения экспертами рабочей группы направлен национальным комитетам для получения замечаний и предложений;
- CDV - документ, в который внесены согласованные экспертами изменения и дополнения направлен национальным комитетам для голосования;
- FDIS - документ отредактирован по результатам замечаний, полученных на этапе CDV, и направлен национальным комитетам для голосования по результатам которого принимается решение об издании международного стандарта.

Благодаря вышеуказанной процедуре и участию в обсуждении международных экспертов в стандартах МЭК отражен мировой опыт эксплуатации приборов контроля ЯРБ.

В стандартах МЭК предъявлены требования к метрологическим, техническим и эксплуатационным характеристикам средств и приведены методы испытаний на подтверждение соответствия средств этим требованиям, поэтому испытания в соответствии с требованиями стандартов МЭК гарантируют корректную работу средств в реальных условиях эксплуатации.

Стандарты МЭК разрабатываются для конкретных типов средств контроля ЯРБ, поэтому предъявляют конкретные специфичные для данных типов средств требования и определяют методы испытаний на соответствие этим требованиям. Например:

**Дозиметрия бета-, рентгеновского и гамма-излучений**

МЭК 60846-1, 2009-04, Приборы радиационной защиты - Измерители амбиентного и/или направленного эквивалента дозы (мощности) для бета, рентгеновского и гамма-излучений, – Часть 1. Переносные измерители для рабочих мест и окружающей среды

МЭК 60846-2, 2007-07, Приборы радиационной защиты - Измерители амбиентного и/или направленного эквивалента дозы (мощности) для бета, рентгеновского и гамма-излучений, - Часть 2. Высокодиапазонные переносные измерители дозы и мощности дозы бета и фотонного излучений для радиационной защиты в чрезвычайных ситуациях

МЭК 60532, 2010-08, ред.3 Приборы радиационной защиты - Стационарные измерители мощности дозы, сигнализаторы и мониторы рентгеновского и гамма-излучений с энергиями от 50 кэВ до 7 МэВ.

#### **Контроль выбросов**

МЭК 60761-1, ред.2, 2002-01, Приборы радиационной защиты Оборудование для непрерывного контроля радиоактивности в газовых выбросах. Часть 1:-Основные требования

МЭК 60761-2, ред.2, 2002-01, Приборы радиационной защиты. Оборудование для непрерывного контроля радиоактивности в газовых выбросах. Часть 2:-Специальные требования к мониторам радиоактивных аэрозолей включая трансурановые аэрозоли

МЭК 60761-3, ред. 2, 2002-01, Приборы радиационной защиты. Оборудование для непрерывного контроля радиоактивности в газовых выбросах. Часть 3:-Специальные требования к мониторам радиоактивных благородных газов

МЭК 60761-4, ред.2, 2002-01, Приборы радиационной защиты. Оборудование для непрерывного контроля радиоактивности в газовых выбросах. Часть 4:-Специальные требования к мониторам радиоактивного йода

#### **Контроль воздушной среды**

МЭК 61172 (1992-09) ред.1, Приборы радиационной защиты - Оборудование для мониторинга – Радиоактивные аэрозоли в окружающей среде

МЭК 61578, 1997-08, Приборы радиационной защиты - Калибровка и поверка эффективности компенсации радона измерителей альфа и/или бета аэрозолей – Методы испытаний

МЭК 61171 (1992-09) ред.1, Приборы радиационной защиты - Оборудование для мониторинга — Атмосферные радиоактивные йоды в окружающей среде

МЭК 62302, 2007-09, Приборы радиационной защиты - Оборудование для пробоотбора и мониторинга радиоактивных благородных газов

#### **Система аварийной сигнализации о самоподдерживающейся цепной реакции (САС СЦР)**

МЭК 60860, 1987-06, Сигнальное оборудование для предупреждения критических ситуаций

ANSI/ANS-8.3-1997 Сигнальная система критического состояния / пересмотрен 2003-06-12

ISO 7753-1987, Требования к эксплуатационным характеристикам и методам испытаний систем обнаружения критического состояния и аварийной сигнализации

#### **Контроль в аварийных и послеаварийных условиях на АЭС**

МЭК 60951-1, 2009-06, ред.2 Атомные станции – Оборудование важное для безопасности – Радиационный контроль в аварийных и послеаварийных условиях – Часть 1: Основные требования

МЭК 60951-2, 2009-06, ред.2 Атомные станции – Оборудование важное для безопасности – Радиационный контроль в аварийных и послеаварийных условиях – Часть 2: Оборудование непрерывного автономного (оф-лайн) контроля радиоактивности в газовых выбросах и вентсистемах

МЭК 60951-3, 2009-06, ред.2 Атомные станции – Оборудование важное для безопасности – Радиационный контроль в аварийных и послеаварийных условиях – Часть 3: Оборудование непрерывного контроля гамма-излучения высокого диапазона

МЭК 60951-4, 2009-06, ред.2 Атомные станции – Оборудование важное для безопасности – Радиационный контроль в аварийных и послеаварийных условиях – Часть 4: Оборудование непрерывного контроля в потоке (in-line) или он-лайн радиоактивности в технологических потоках (in process streams )

Массовый аутентичный перевод стандартов МЭК по средствам контроля ЯРБ в ранг национальных стандартов нежелателен, т.к. это повлечет за собой пересмотр многих нормативных и методических документов без учета возможностей отечественной метрологической и испытательной базы, терминологии и др.

Наиболее оптимальным путем внедрения требований международных стандартов является разработка стандартов организации (СТО ГК «Росатом», Казатомпром).

#### **Вторая проблема – ошибки в нормировании.**

Нормативные документы должны разрабатываться на основе не только российских, но также и международных документов разрабатываемых следующими организациями:

International Commission on Radiological Protection (ICRP), Международная комиссия по радиационной защите (МКРЗ), организован в 1928г. как Международный комитет по защите от рентгеновского излучения и излучения радия.

International Commission on Radiation Units and Measurements (ICRU), Международная комиссия по радиационным единицам и измерениям (МКРЕ), организован в 1925г. Ответственен за радиационные величины и единицы, процедуры измерения и применения этих величин, физические данные необходимые для этих процедур.

МКРЗ на основании радиобиологических знаний обосновывает, дает рекомендации по нормируемым величинам, дозовым пределам, уровням вмешательства и т.д.

МКРЕ разрабатывает рекомендации по операционным величинам соответствующих нормируемых величин.

Международное агентство по атомной энергии, МАГАТЭ, на основании рекомендации МКРЗ и МКРЕ готовит руководства по безопасности.

Основными документами по дозиметрии являются:

Доклад 60 и 61 МКРЗ, Пределы годового поступления радионуклидов в организм работающих, 1990

ICRU Report 57, Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation, 1997

(Доклад 53 МКРЕ, Переходные коэффициенты для использования в радиационной защите от внешнего излучения)

ICRP Publication 74, Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation, 1997

(Доклад 74 МКРЗ, Переходные коэффициенты для использования в радиационной защите от внешнего излучения)

Руководство по безопасности МАГАТЭ № RS-G-1.3 «Оценка профессионального облучения от внешних источников ионизирующего излучения», 1999

Руководство по безопасности МАГАТЭ № RS-G-1.2 «Оценка профессионального облучения вследствие поступления радионуклидов», 1999

Доклад 103 МКРЗ, Рекомендации Международной комиссии по радиационной защите от 2007 года

Национальные нормы не всегда соответствуют международным нормам:

Пример 1:

ICRP, Publication No. 75 General Principles for the Radiation Protection of Workers, 1997 (Основные принципы радиационной защиты работников):

3.3.6. Внешнее облучение женщин

(123) «...общий риск связанный с облучением женщин и мужчин одинаковы ...и Комиссия не делает межполовых различий в контроле внешнего облучения»

**Но в НРБ-99/2009 России и проект НРБ Казахстана требование:**

п.3.1.8. «Для женщин в возрасте до 45 лет... вводятся дополнительные ограничения: эквивалентная доза на поверхности нижней части области живота не должна превышать 1 мЗв в месяц...»

Лишнее ограничение приводит к лишнему контролю и лишним затратам для получения бесполезной информации.

Пример 2:

**П.7.5.НРБ-99/2009, п.69 проект НРБ Казахстана:**

«Контроль и учет индивидуальных доз облучения, полученных гражданами при использовании источников ионизирующего излучения, проведении медицинских рентгенорадиологических процедур, а также обусловленных естественным радиационным и техногенно измененным радиационным фоном, осуществляются в рамках единой государственной системы контроля и учета индивидуальных доз облучения» (ЕСКИД).

При этом ранее говорится о том, что дозы от медицинского облучения и от фона не нормируются, т.е. контроль и учет этих доз бессмыслен и потребуют значительных затрат.

В мировой практике нет контроля и учета доз от естественного фона, вводятся контрольные уровни в предприятиях и референтные диагностические или указательные уровни (РДУ) в медицине (Руководство МАГАТЭ № RS-G-1.5 «Радиологическая защита при медицинском облучении ионизирующим излучением», 2004

**Заключение**

Необходимо гармонизировать требования к оборудованию контроля РБ с требованиями международных стандартов и для этого:

Необходимо разработать национальные стандарты или организации (ГК «Росатом, Казатомпром) по оборудованию контроля ЯРБ на базе международных стандартов.

Аутентичные переводы стандартов нежелательны, т.к. у нас другая испытательная и метрологическая база и терминология.

Национальные нормативные документы также должны разрабатываться на базе международных рекомендации.

## **ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИИ НА ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА НЕКОТОРЫХ ОКСИДНЫХ МАТЕРИАЛОВ**

И.Х. Абдукадырова

*Институт ядерной физики Академии наук Узбекистана. Ташкент  
(100214 Ташкент, пос. Улугбек, ИЯФ АН РУз. E-mail: izida@inp.uz)*

В литературе имеются сообщения о влиянии различных обработок на различные физические свойства твердотельных оксидных материалов [1-5]. Так, в [1] рассмотрен вопрос зависимости поверхности подобных материалов на примере кварца и титаната бария от электронно-лучевой обработки. В [2] изучены термостимулированные явления в корунде. Вопросы переноса энергии в диэлектриках посвящена работа [3], а электропроводности в окисных материалах - работа [4]. Что касается действия ионизирующего излучения на оптические и электрические свойства оксида кремния, то этому вопросу посвящены следующие сообщения [5-6]. Настоящая работа является продолжением начатых нами исследований по влиянию радиации на электрические свойства диэлектрических оксидных материалов на примере кристаллов диоксида кремния (ДК) [6]. В качестве источника излучения использована гамма-установка института, поглощенная доза варьировалась в интервале  $D=10^4 - 10^8$  рад.



Данные предыдущих изменений терморadiационной зависимости тангенса угла диэлектрических потерь  $\text{tg}\delta$  диоксида кремния на частоте  $f=0,3$  кГц показали, что температурная зависимость данной характеристики кристалла при дозе  $D=10^6$  рад имеет двух стадийный характер с появлением при дозе  $10^7 - 10^8$  рад двух полос дополнительного поглощения около  $50$  и  $150^\circ\text{C}$ . Оказалось, что с повышением дозы ( $10^7 - 10^8$  рад) интенсивность первого пика растет, а второго – снижается, что указывает на различную природу обоих пиков.

Представляло интерес определить ход аналогичной зависимости для второго диэлектрического свойства кристалла - статической диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ). Полученные на частоте  $f=0,3$  кГц зависимости параметра приведены на рис. 1. Сопоставление этих графиков с зависимостью  $\text{tg}\delta(D)$  указывает на различный их ход при  $D=10^7$  рад. Действительно, вместо пропорционального двух стадийного роста угла потерь обнаружено экстремальное изменение второй характеристики кристалла, когда наводятся два характерных пика, местоположение которых аналогично таковому для первой характеристики материала, но после его последующей обработки дозами  $D=10^7$  рад и  $10^8$  рад. Это позволяет заключить, что из двух электрических свойств кристалла проницаемость оказалась более чувствительной к радиации.

Вместе с тем повышение дозы ионизирующего излучения на два порядка ( $10^6 - 10^8$  рад), в свою очередь, привело к видоизменению формы кривой  $\epsilon(T)$ . Согласно графика 2 (рис. 1), интенсивность пика  $T_{\text{макс}}=50^\circ\text{C}$  резко возросла при действии больших доз гамма-квантов. Но пик с  $T_{\text{макс}}=150^\circ\text{C}$  исчез, а при  $T>180^\circ\text{C}$  функция  $\epsilon(T)$  вновь интенсивно нарастала (последнее не наблюдается при  $D=10^6$  рад). Из сравнения дозовых зависимостей обеих диэлектрических характеристик ДК следует вывод, подтверждающий ранее высказанное мнение о различной природе дефектов, ответственных за появление указанных пиков.

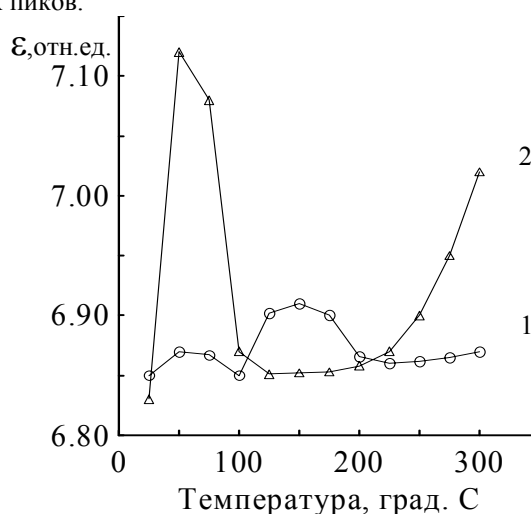


Рис. 1. Особенности изменения  $\epsilon(T)$  кристаллов при  $D=10^6$  (1) и  $10^8$  (2).

Если учесть мнение авторов [7], то в первом приближении можно высказать некоторое предположение о механизме обнаруженного явления радиационного модифицирования диэлектрических параметров диоксида. В целом допускаем, что механизмами, определяющими варьирование диэлектрической проницаемости при радиационной обработке кристалла, являются электронная и ионная поляризации, которые, очевидно, служат одной из причин, приводящих к появлению данных максимумов на графиках  $\epsilon(T)$ .

Нами [6] было показано, что сквозная проводимость на постоянном токе гамма облученного кристалла ( $D=10^6$  рад)  $\sigma_0$  имеет ход, подобный температурной кинетике тангенса угла потерь исходного образца. Повышение дозы не привело к его видоизменению. Однако, в дальнейшем нами обнаружены на температурной зависимости полной проводимости материала аналогичные максимумы ( $\text{tg}\delta(T)$ ). Все это с учетом выявленных кинетик для  $\text{tg}\delta(T)$  служит основанием для предположения, что наведенные радиацией максимумы дополнительного диэлектрического поглощения обусловлены не сквозной проводимостью, а релаксационной [7-9]. Следовательно, допускается, что другой причиной появления обоих искомых пиков является релаксационная, миграционная поляризации. По-видимому, действие этих двух причин и определяет обнаруженные особенности терморadiационных зависимостей рассмотренных диэлектрических свойств ДК.

Рассмотрено детально влияние частоты измерения на температурную зависимость тангенса угла потерь кристалла. В качестве примера на рис. 2 приведены соответствующие экспериментальные данные, полученные впервые для кристаллов, облученных большой дозой ( $D=10^8$  рад), и измеренные в широком диапазоне частот  $f=0,3-30$  кГц. Сравнительный анализ серии графиков  $\text{tg}\delta(T, f)$  на этом рисунке указывает на их нелинейный ход в зависимости от  $f$  и  $T$  и наличие выше отмеченных пиков. Заметим особо различный ход данной функции в районе расположения каждого из пиков. Так, для высокотемпературного пика наблюдается постепенное уменьшение его интенсивности с ростом частоты, т.е. выполняется обычный закон [8], характерный для ряда диэлектрических материалов. Однако иная картина обнаружена для низкотемпературного пика, ибо в этом случае этот закон нарушается.

Табл.1 Температурно-частотные зависимости диэлектрических потерь облученного дозой  $10^8$  рад кристалла

частота, кГц	T = 50 <sup>0</sup> C	T = 150 <sup>0</sup> C
0,3	0,075	0,032
1	0,12	0,012
3	0,25	0,0036
10	0,65	0,0025
20	0,60	0,0021
30	0,51	0,0011

Для наглядности кинетические зависимости  $\text{tg}\delta(f)$  для двух отмеченных выше максимумов приведены на следующей табл.1. Она иллюстрирует частотную зависимость угла потерь обоих пиков во всем использованном диапазоне  $f$ . Данные таблицы показывают возможность описания частотной зависимости электрического параметра для высокотемпературного пика степенным законом. Что касается низкотемпературного пика, то ему присуще не монотонное, а экстремальное увеличение значения угла потерь (табл.1) по мере роста частоты.

Таким образом, изложенные в работе экспериментальные результаты изменения тангенса угла потерь в функции T, D, f обработанного ионизирующей радиацией кристалла свидетельствуют в пользу предположения, сделанного на основе аналогичных зависимостей изменения диэлектрической проницаемости, о разной природе центров, связанных с появлением искомых пиков.

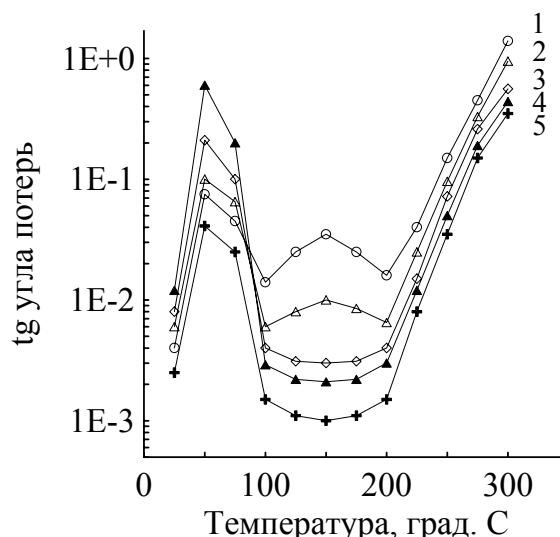


Рис. 2. Температурно-частотная зависимость  $\text{tg}\delta$  облученных кристаллов при  $f=0,3$  (1), 1 (2), 3 (3), 10 (4), 30 (5) кГц

Наряду с этим, из рис. 2 видно, что местоположение максимумов дополнительного диэлектрического поглощения на графиках  $\text{tg}\delta(T)$  не меняется с возрастанием частоты на два порядка. Следовательно, согласно [9], эти потери энергии в облученном кристалле могут определяться диэлектрической проницаемостью оксида и наличием абсорбционного тока, вызванного релаксационной поляризацией. Итак, совокупность имеющихся экспериментальных результатов позволяет предположить, что механизм терморadiационного изменения диэлектрических свойств кристаллического ДК преимущественно определяется действием поляризационных процессов, обусловленных электрон-ионной и миграционной поляризуемостью гамма облученного материала.

Для уточнения природы наведенных в образцах при  $10^6$  рад пиков на  $\epsilon(T)$  была предпринята оценка еще одного диэлектрического параметра - коэффициента потерь ( $\epsilon_2$ ). Если использовать следующее выражение, связывающее электрические характеристики твердых диэлектриков [9]:

$$\text{tg}\delta = [(4\pi \sigma_0 / \omega + \epsilon_2(\omega)) / \epsilon_1(\omega)], \quad (1)$$

где  $\epsilon_2$  - коэффициент потерь,  $\epsilon_1$  - диэлектрическая проницаемость,  $\omega$  - частота,  $\sigma_0$  - сквозная проводимость, то из него можно вычислить искомый параметр. Согласно проведенным вычислениям по ф-ле (1), полученные для  $10^6$  рад результаты показали, что функция  $\epsilon_2(T)$  проходит через максимум при 50<sup>0</sup>C. Сравнение хода функции  $\epsilon_2(T)$  и  $\epsilon(T)$  показало, что в обоих случаях имеется максимум при 50<sup>0</sup>C, это позволяет уточнить его природу. Действительно, помимо того, что коэффициента потерь ( $\epsilon_2$  и искомый пик) характеризует запасенную энергию электрического поля в данном диэлектрике, он отражает радиационную кинетику процесса дополнительной потери энергии в материале в результате установления поляризации, которая переходит в тепловую энергию.



## **Заключение**

Экспериментально установлены терморadiационные зависимости ряда диэлектрических свойств кристаллов диоксида кремния, облученных набором доз гамма-излучения. Установлено экстремальное изменение температурных зависимостей коэффициента потерь, тангенса угла диэлектрических потерь, проницаемости кристаллов, обнаружено появление дополнительного диэлектрического поглощения в области невысоких температур. Определено влияние частоты в широком интервале от 0,3 кГц до 30 кГц на ход зависимости  $\text{tg}\delta$  (Т) в материале, облученном большими дозами. Выявлена закономерность варьирования частотной зависимости угла потерь, которая специфична для наведенных полос поглощения. В рамках существующих моделей обсуждается природа этих максимумов и механизм терморadiационного изменения диэлектрических параметров кристаллов диоксида кремния.

## **Список литературы**

1. Васильев И.В., Мякин С.В., Рылова Е.В. и др. // Жур. хим. физ. 2002. Т. 76, № 1. С.84.
2. Робул Ю.В., Вилинская Л.М., Мик В.Т. // УФЖ. 2002. Т. 49, № 10. С. 9559.
3. Емельянов О.А. // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30, в. 19. С. 40.
4. Горбачук Н.И., Гурин В.С., Поклонский Н.А. // ФХС. 2001. Т. 27, № 6. С. 762.
5. Jong K.H., McKeever S.W.S. // J. Phys. D. 1990. V. 23, N 2. P. 237..
6. Мухамеджанов М.А., Абдукадырова И.Х., Сандалов В.Н. // Тез. докл. 3 междунар. конференции «Ядерная и радиационная физика». 4-7 июня 2001г. Алматы. С. 284.
7. Губкин А.Н. Физика диэлектриков. М. : Высш. школа. 1971. 174с.
8. Костюков Н.С., Скрипников Ю.С. // Электронная техника. Сер. 6: Материала. 1981. В. 11. С. 76.
9. Фрелих Г. Теория диэлектриков. М.: ИЛ. 1960. 251с.

## **ВЛИЯНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ ВАКУУМНОЙ КАМЕРЫ ТОКАМАКА КТМ НА УСТОЙЧИВОСТЬ ПЛАЗМЕННОГО ШНУРА.**

Б.Ж. Чектыбаев, Г.В. Шаповалов, О.В. Шумайлова, Садыков А.Д.  
*Институт атомной энергии НЯЦ РК, г. Курчатов, Казахстан*

## **ВВЕДЕНИЕ**

Токамак КТМ строится в Республике Казахстан в рамках национального проекта по развитию технологий управляемого термоядерного синтеза. Его характеристики приведены в работах [1], фотографию уже смонтированной установки можно найти в [2]. Установка спроектирована в ФГУП НИИЭФА им. Д.В. Ефремова, её основные узлы изготовлены там же. Первый плазменный разряд на КТМ был получен 5 сентября 2010 г. [3], в настоящее время на КТМ осуществляется подготовка к запуску в омическом штатном режиме. В комплекс подготовительных работ входит также и более детальная проработка сценария разряда.

Токамак КТМ относится к установкам с вытянутым сечением. Однако плазма вытянутого сечения в токамаке неустойчива в вертикальном направлении и имеется необходимость в стабилизации такой неустойчивости. Вакуумная камера и элементы её конструкции выполняют роль пассивной стабилизации увеличивая время развития неустойчивости, которое должно быть достаточным для возвращения плазменного шнура в исходное положение системой активных обратных связей (АОС). На рисунке 1 изображено сечение токамака КТМ, где показаны пассивные стабилизирующие элементы, а так же обмотки быстрого управления НФС системы активных обратных связей. Если по каким-либо причинам время развития неустойчивости будет меньше времени отработки смещения системой АОС, то это может привести к повреждению первой стенки и серьезным авариям.

В настоящей работе проведен анализ влияния элементов конструкции вакуумной камеры КТМ, в частности проводящих элементов диверторного стола, витков пассивной стабилизации и их температуры на подавление вертикальной неустойчивости плазмы.

Расчеты проводились с использованием двух расчетных кодов TOKAMEQ [4,5] и TOKSTAB [6]. Код TOKAMEQ использовался для построения равновесной конфигурации плазмы. А код TOKSTAB непосредственно для проведения расчётов развития вертикальной неустойчивости плазмы.

Полученные результаты позволят улучшить будущую эксплуатацию токамака КТМ и уменьшить возможность развития вертикальных срывов, исключив нежелательные режимы и влияние элементов конструкции ВК на устойчивость плазменного шнура.

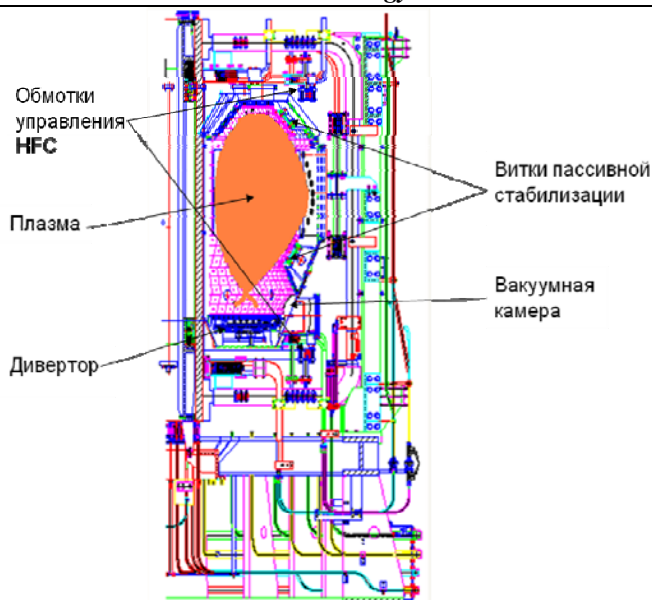


Рисунок 1 – Внешний вид токамака КТМ.

## РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЁТОВ

**Краткое описание кодов TOKAMEQ и TOKSTAB.** Код TOKAMEQ [7, 8] – стандартный код для расчёта МГД равновесия плазмы в токамаке. С помощью данного кода было выполнено проектирование нескольких установок токамак [9,10]. Код TOKSTAB — стандартный код для расчёта вертикальной неустойчивости плазмы в токамаке, применявшийся, например, в [9,11]. С помощью ранних версий кодов TOKAMEQ и TOKSTAB впервые было произведено сравнение результатов математического моделирования и реального эксперимента на установке токамак и получено их хорошее соответствие [12]. Так же расчеты, выполненные по этим кодам, неоднократно сравнивались с другими кодами и показывали достаточную сходимость результатов, что говорит о достоверности получаемых результатов. Одним из таких примеров являются расчеты, проведенные в работах [2,13].

**Результаты вычислений по кодам TOKAMEQ и TOKSTAB.** Для проведения анализа влияния элементов вакуумной камеры КТМ на устойчивость плазменного шнура были взяты несколько временных точек из базового омического сценария разряда [1]. При помощи кода TOKAMEQ воспроизводилось МГД-равновесие, которое далее анализировалось с помощью кода TOKSTAB. При вычислениях по коду TOKSTAB учитывались геометрические и физические параметры плазменного шнура, а также геометрия самой установки.

В качестве базовых были взяты операционные точки, соответствующие 195 и 315 мс сценария разряда. Момент времени 195 мс соответствует образованию диверторной конфигурации, 315 мс — фазе вывода тока плазмы на плато. Эти временные точки являются наиболее интересными с точки зрения вертикальной устойчивости, т.к. в момент времени 195 мс плазма переходит от лимитерной конфигурации, приобретая вытянутую диверторную конфигурацию. А к 315 мс плазменный шнур выходит на плато тока и имеет максимальное значение вытянутости.

Следующим шагом после расчета равновесной плазменной конфигураций стало определение инкремента неустойчивости (обратного инкремента неустойчивости  $\tau$ ) с помощью кода TOKSTAB. Для проведения расчетов была построена модель вакуумной камеры из её элементов конструкции, проводящих в тороидальном направлении. Их размеры, расположение, форма и материал, из которого они изготавливались, соответствовали техническому проекту [1]. Взаимное расположение данных элементов и сечения плазменного шнура в рассматриваемые моменты времени показаны на рисунках 1, 2.

В таблице 1 приведены результаты вычислений конфигурации плазмы в соответствующих временных точках. Здесь приняты следующие обозначения:  $R_0$ ,  $Z_0$  — координаты магнитной оси;  $R_{min}$ ,  $R_{max}$ ,  $Z_{min}$ ,  $Z_{max}$  — значения координат четырёх крайних точек плазменного шнура;  $I_{pl}$  — ток в плазме на данный момент сценария разряда;  $\beta_p$ ,  $l_i$ ,  $k_x$  — соответственно значения полоидального бета, внутренней индуктивности и вытянутости плазменного шнура;  $\tau$  — характерное время развития вертикальной неустойчивости (обратный инкремент).

Таблица 1 – Параметры плазмы по результатам расчётов

Время t, мс	$R_0$ , м	$Z_0$ , м	$R_{min}$ , м	$R_{max}$ , м	$Z_{min}$ , м	$Z_{max}$ , м	$I_{pl}$ , МА	$\beta_p$	$k_x$	$l_i$	$\tau$ , мс
195	0,955	0.23	0.455	1.35	-0.52	0.81	0.45	0,17	1,53	0,995	<b>314</b>
315	0,95	0.265	0.46	1.34	-0.56	0.95	0.75	0,15	1,72	1	<b>72</b>

Для токамака КТМ постоянная времени обмоток быстрого управления НФС имеет значение примерно 70 мс. Как видно из таблицы 1 значения обратного инкремента неустойчивости не меньше этого значения, что говорит о достаточно хорошей возможности управления смещением плазменного шнура активными обратными связями.

Влияние элементов конструкции на устойчивость плазменного шнура. Для изучения влияния различных элементов конструкции установки КТМ на устойчивость плазмы были проведены несколько серий вычислений.

Первая серия вычислений касалась изучения влияния дивертора на устойчивость плазменного шнура.

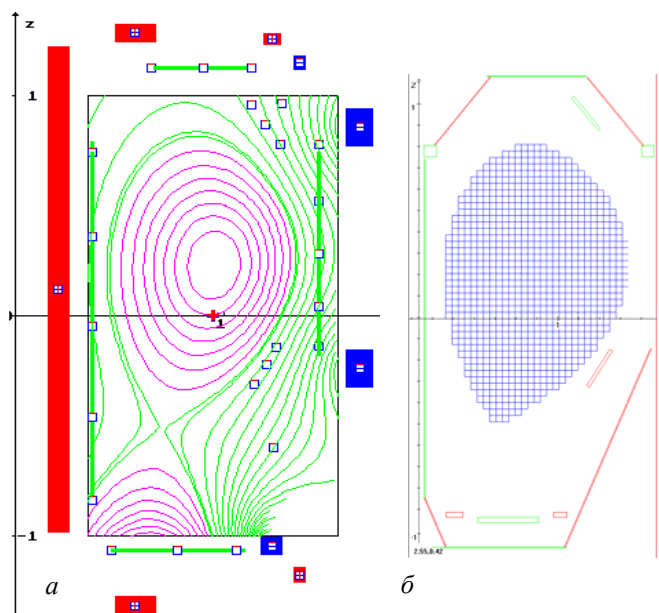


Рисунок 2 – Конфигурация плазменного шнура в момент времени 195 мс (а - код TOKAMEQ, б – код TOKSTAB )

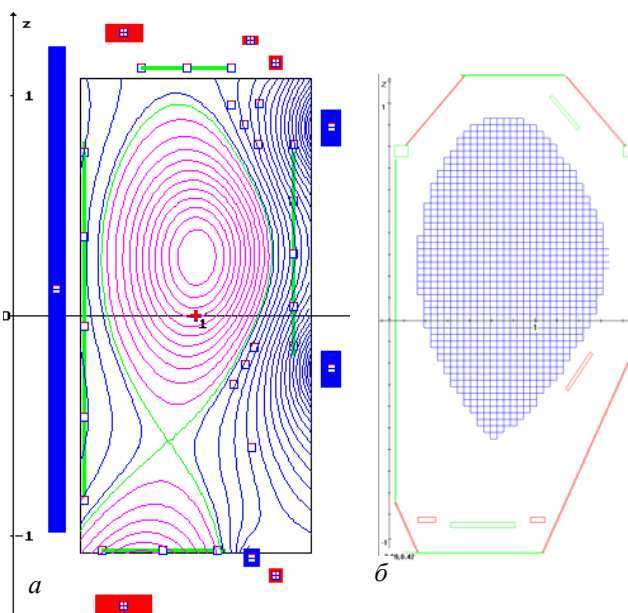


Рисунок 3 – Конфигурация плазменного шнура в момент времени 315 мс (а - код TOKAMEQ, б – код TOKSTAB )

В токамаке КТМ конструкция диверторного стола (рисунок 1) допускает его смещение по вертикали, поэтому представляется интересным исследовать влияние положения дивертора на время развития неустойчивости. На рисунках 2-3,б показаны проводящие в тороидальном направлении и образующие контур элементы диверторного стола. В расчётах были фиксированы размеры прямоугольного сечения диверторного стола по  $r$  и  $z$ , и, а также положение его  $r$ -координаты центра  $R_0$ . Были рассмотрены варианты со смещением  $z$ -координаты центра сечения диверторного стола  $Z_0$ , а также рассмотрен вариант отсутствия дивертора в токамаке. Полученные результаты сведены в табл. 2. Следует отметить, что рассматривались только варианты со смещением диверторного стола вверх, так как в базовом варианте он находится в крайнем нижнем положении.

Таблица 2 – Влияние дивертора на инкремент неустойчивости

Момент времени, мс	Обратный инкремент неустойчивости, $\square_\gamma$ мс			
	без дивертора	смещение на 2 см	смещение на 5 см	смещение на 10 см
195	313,39	314, 72	314, 92	315,52
315	70,88	71,35	71,40	71,57

Из приведённых данных таблицы 2 видно, что диверторный стол практически не влияет на устойчивость.

Важным элементом конструкции установки КТМ являются витки пассивной стабилизации. С целью изучения их влияния на устойчивость плазмы был проведён ряд вычислений. Были рассмотрены следующие варианты: вакуумная камера без витков пассивной стабилизации, только витки пассивной стабилизации без ВК. Исследовалось также влияние смещения витков пассивной стабилизации. Результаты сведены в таблицы 3 и 4. При исследовании влияния смещения витков пассивной стабилизации основным критерием, влияющим на выбор значения смещения, явилась точность их установки, которая не может быть хуже 1 см. Рассматривались предельные случаи одновременного смещения витков.

Таблица 3 – Влияние витков пассивной стабилизации (ВПС) на устойчивость плазменного шнура

Момент времени, мс	Базовый вариант	Вакуумная камера без ВПС	Только ВПС без вакуумной камеры
315	$\tau = 72,36$ мс	$\tau = 1,3$ мс	$\tau = 66,2$ мс
195	$\tau = 314$	$\tau = 5,674$ мс	$\tau = 283,4$

Таблица 4 – Влияние смещения витков пассивной стабилизации на устойчивость плазменного шнура

Момент времени, мс	Смещение верхних и нижних ВПС по оси $z$ навстречу на 1 см	Смещение верхних и нижних ВПС по оси $z$ в противоположные стороны на 1 см	При удалении верхнего ВПС	При удалении нижнего ВПС
315	$\tau = 77,28$ мс	$\tau = 67,6$ мс	$\tau = 15,76$ мс	$\tau = 3,93$ мс
195	$\tau = 323,9$ мс	$\tau = 303,16$ мс	$\tau = 163,7$ мс	$\tau = 51,15$ мс

Полученные результаты говорят об определяющем влиянии наличия витков пассивной стабилизации внутри вакуумной камеры на устойчивость плазменного шнура. Из таблицы 3 видно, что в случае их отсутствия время развития неустойчивости уменьшается в 57 раз, что приводит к быстрому (1,3 мс) уходу плазменного шнура на стенку, при котором не успеет включиться активная обратная связь. Расчёт подавления неустойчивости плазмы одной лишь системой ВПС, без вакуумной камеры, показывает, что происходит уменьшение обратного инкремента неустойчивости примерно на 10%. Это говорит о небольшом, но положительном влиянии вакуумной камеры на устойчивость плазменного шнура. Из таблицы 4 видно, что смещение по вертикали ВПС навстречу на 1 см приводит к увеличению обратного инкремента неустойчивости, а в противоположные стороны также на 1 см приводит к его уменьшению примерно на 10%, что говорит о сильном влиянии положения ВПС на величину обратного инкремента. Также видно, что удаление одного из ВПС приводит к существенному уменьшению обратного инкремента неустойчивости, что недопустимо для токамака КТМ.

В процессе работы вакуумная камера и её элементы могут нагреваться, поэтому были проведены расчеты влияния температуры на устойчивость плазмы. Все расчеты проведены при сопротивлении элементов вакуумной камеры соответствующей температуре 25; 100; 150; 200 °С. Максимальная температура соответствует температуре прогрева вакуумной камеры при проведении её вакуумной откачки. На рисунке 4 изображен график зависимости обратного инкремента от температуры.

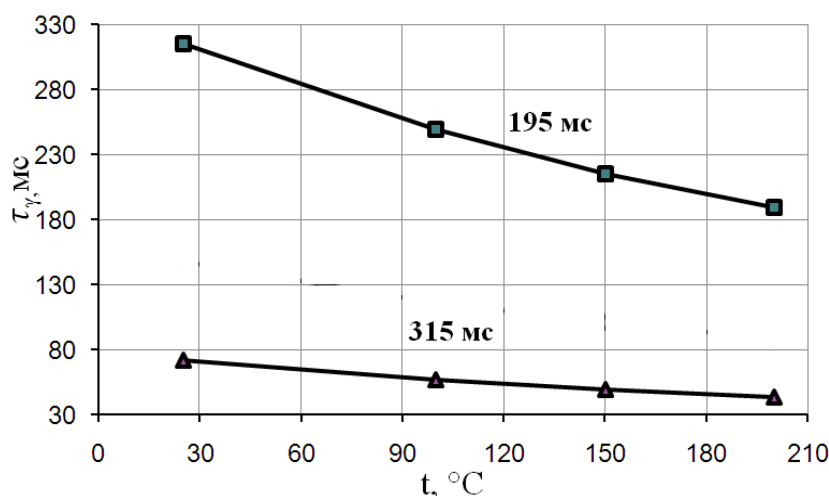


Рисунок 4 – Зависимость обратного инкремента неустойчивости от температуры

Как видно из рисунка 4 зависимость обратного инкремента неустойчивости от температуры элементов вакуумной камеры имеет примерно линейный вид и уменьшается примерно в 1,5 раза при возрастании температуры от 25°С до 200°С.

Для рассматриваемого момента времени 195 мс, даже при температуре элементов ВК 200 °С, значение характерного времени развития неустойчивости имеет достаточное значение для работы АОС. Однако для момента времени 315 мс при увеличении температуры ВК время развития неустойчивости принимает значения при которых системе обратных активных связей может и хватить времени для возвращения плазменного шнура на место. Таким образом, в процессе разряда желательно иметь температуру вакуумной камеры близкой к 25 °С.

### **ВЫВОДЫ**

Во всех рассмотренных временных точках сценария разряда время развития неустойчивости достаточно большое для отработки и подавления неустойчивости активными обратными связями.

Анализ влияния элементов конструкции показал, что витки пассивной стабилизации играют главную роль в подавлении вертикальной неустойчивости плазмы в токамаке КТМ. Также было определено, что влияние диверторного стола и других элементов конструкции вакуумной камеры на устойчивость плазменного шнура незначительно.

Так же было определено, что для плазмы на стадии плато тока при увеличении температуры устойчивость плазменного шнура уменьшается и при достаточно большой температуре элементов вакуумной камеры характерное время развития неустойчивости может превысить возможность её подавления активными обратными связями.

### **СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ**

1. Азизов Э.А., Докука В.Н., Хайрутдинов Р.Р., Минеев А.Б. Разработка и анализ программных сценариев разрядов в плазме Казахстанского материаловедческого токамака (КТМ). — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2009, вып. 4, с. 37—53.
2. Сычугов Д.Ю., Шаповалов Г.В., Волынкина Ю.В., Садыков А.Д., Чектыбаев Б.Ж., Шипилов Д.В., Шумайлова О.Н. Численное моделирование омического сценария разряда в токамаке КТМ. — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2010, вып. 1, с. 38—45.
3. Хроника. — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2010, вып. 3, с. 75.
4. Вознесенский В.А., Гасилов Н.А., Днестровский Ю.Н., Кузнецов А.Б., Сычугов Д.Ю., Цаун С.В. ТОКАМЕQ — код для расчёта равновесия плазмы в Токамаке. — М.: РИЦ «Курчатовский институт», 2001.

5. Сычугов Д.Ю. Новая версия кода TOKAMEQ для расчёта конфигураций с произвольным профилем тока и расширенным дивертором (модуль библиотеки программ «Виртуальный токамак»). — ВАНТ. Сер.Термоядерный синтез, 2009, вып. 3, с. 60—62.
6. Сычугов Д.Ю., Амелин В.В., Гасилов Н.А. Модуль TOKSTAB (модуль библиотеки программ «Виртуальный токамак»). — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2010, вып. 3, с. 46—49.
7. Galkin S.A., Ivanov A.A., Medvedev S.Yu., Poshekhonov Yu.Yu. Comparison of tokamak axisymmetric mode growth rates from linear MHD and equilibrium evolution approaches. — Nuclear Fusion, 1997, vol. 37, № 10, p. 1455.
8. Ivanov A.A., Galkin S.A., Drozdov V.V., Medvedev S.Yu., Poshekhonov Yu.Yu. Numerical simulation of free boundary tokamak plasma equilibrium evolution with flux conservation and self-consistent plasma surface current. — In: 40th APS DPP Meeting. New Orleans, USA, November 16—20, 1998. — Bull. Am. Phys. Soc., 1998, vol. 43, p. 1749.
9. Какурин А.М., Леонов В.М., Ноткин Г.Е., Хвостенко П.П., Цаун С.В., Бондарчук Э.Н., Васильев В.И., Минеев А.Б., Максимова И.И., Амелин В.В., Гасилов Н.А., Сычугов Д.Ю. Основные сценарии разряда токамака Т-15М. ВАНТ. Серия Термоядерный Синтез, выпуск.4, 2005, с.53-75.
10. G.M.Voss, S.Davis, A.Dnestrovskij, A.Kirk, P.J.Knight, M.Loughlin, M.O'Brien, D.Yu. Sychugov, A.Tabasso, H.R.Wilson. Conceptual Design of a Component Test Facility Based on the Spherical Tokamak. ISFNT-8 Conference, Heidelberg, Germany, October 2007, PS3-1005.
11. Bondarchuk E.N., Dnestrovskii Yu.N., Leonov V.M., Maksimova I.I., Sychugov D.Yu., Tsaun S.V., Voznesesky V.A. Vertical MHD stability of the T15-M tokamak plasma. — Plasma Devices and Operations, 2003, vol. 11, № 4, p. 219—227.
12. Герасимов С.Н., Попов А.М., Сычугов Д.Ю. Сравнение математического моделирования равновесия и МГД-устойчивости плазмы с экспериментом на установке Т-12. — Физика плазмы, 1983, т. 9, № 4, с. 688—696.
13. Сычугов Д.Ю., Шаповалов Г.В., Садыков А.Д., Чектыбаев Б.Ж., Шумайлова О.Н. Численное исследование вертикальной неустойчивости плазмы в токамаке КТМ. — ВАНТ. Сер. Термоядерный синтез, 2011, вып. 3, с. 88—92.

## **ВОЗМОЖНОЕ РАЗВИТИЕ МЕТОДОВ ПОЗИТРОННОЙ АННИГИЛЯЦИОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ НАНОЯВЛЕНИЙ В НЕФТЕГАЗОДОБЫЧЕ**

В.И.Графутин<sup>1</sup>, Е.П.Прокопьев<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>ФГУП ГНЦ РФ Институт теоретической и экспериментальной физики им. А.И.Алиханова, ул.  
Б.Черемушкинская, 25, 117218, Москва, Россия, e-mail: [eprokopiev@mail.ru](mailto:eprokopiev@mail.ru)

<sup>2</sup>Московский государственный институт электронной техники (МИЭТ), Зеленоград, проезд 4806, д. 5, 124498,  
Москва, Россия

Как утверждается в [1-5], к нефтегазовым нанотехнологиям относятся технологии управления теми наноявлениями, которые определяют извлечение углеводородов из недр. Это прежде всего физико-химические наноявления в геологических средах (телах), пластовых флюидах и промышленном оборудовании при разработке и эксплуатации нефтегазовых залежей. Известно, что эффективность нефтеизвлечения характеризуется коэффициентом извлечения нефти (КИН) от находящейся в пласте ее количества (запасов) [1,2]. При современных технологиях методов закачки воды в пласт для вытеснения нефти (А.П.Крылов и др.) КИН для ряда месторождений достигает величин 0,4-0,5. В настоящее время структура запасов нефти значительно ухудшилась (около 65 % оставшихся запасов являются трудноизвлекаемыми). В России значения КИН в них при заводнении составляют 0,1-0,3.

В то же время развитие с использованием современных технологий и нанотехнологий для трудноизвлекаемых запасов КИН нефти достигли значений 0,4. Исследования динамики изменений значений КИН показали, что для микроструктуры нефтегазовых месторождений (пород) важными показателями являются общая пористость и проницаемость. Прямой связи общей пористости с проницаемостью нет, но существует корреляционная связь между пористостью и проницаемостью. С повышением общей пористости повышается проницаемость породы, за счет увеличения эффективной пористости и увеличения количества крупных пор. Это приводит к резкому увеличению величин КИН при закачке воды и других специальных растворов для вытеснения нефти из пластов пород. Особая роль развития нанотехнологий становится необходимой при освоения нанорезервуаров (нанокolleкторов) — например, нефтяных пластов баженовской свиты Сибири, газовых и метанугольных пластов с наноразмерными поровыми каналами. Говорится [1], что в баженовской свите (основной кладовой российских углеводородов) средний радиус пор равен 1-10 нм, что всего в несколько раз больше размеров молекул.

Согласно [4,5], «ставшие традиционными определения термина «нанотехнологии» в Национальной нанотехнологической инициативе США, Королевском обществе инженеров Великобритании, «РОСНАНО» и других, следует признать суть этих определений: «нанотехнологический подход означает целенаправленное регулирование на молекулярном уровне свойств объектов, определяющих их фундаментальные параметры».

Кроме непосредственно наноразмерных частиц, нанообъектами являются поверхностные наноструктуры (ямки, выступы, канавки, стенки), объемные наноструктуры (поры и капилляры). К объектам исследований наноинженерии также относятся ультрадисперсные системы, в том числе глины, аэрозоли, мицеллярные коллоидные растворы, полимерные золи и гели, а также капиллярные и ионнообменные явления. Умение управлять этими объектами принципиально

важно для повышения коэффициента извлечения нефти (КИН).

Указывается [1-5], что технологический прогресс по добыче углеводородов в России не удовлетворяет современным требованиям и нужно его улучшить. Проведенные исследования показали принципиальную роль наноявлений смачивания и ионного обмена в системе «нефть-газ-вода-порода», которые значительно изменяют распределения нефте- и водо- насыщенностей в пористых средах в отличие от традиционных представлений, и, естественно, показатели разработки месторождений.

Выше уже упоминали, что большую роль в добыче нефти в скором времени станут играть наноколлектора (т.е. коллекторы с размерами пор менее 100 нм), и для их разработки потребуются технологии, учитывающие наноразмер порового пространства. Так, залежи нефти баженновской свиты Западной Сибири, в которых еще не завершены процессы преобразования органического вещества (керогена) в подвижные углеводороды, имеют геологические ресурсы углеводородов более 100 млрд. тонн. Основная часть углеводородов сосредоточена в коллекторе со средним радиусом пор 8-25 нм. КИН при традиционных способах – 0,03-0,05, что нерентабельно. КИН при нанотехнологиях может составить более 0,3. В этом случае потенциал прироста извлекаемых запасов нефти превысит 30 млрд. тонн.

Другой пример наноколлектора – уголь [4,5]. В недрах угольных бассейнов сосредоточены значительные ресурсы спутника угля – метана, соизмеримые с ресурсами газа традиционных месторождений мира. Угольные бассейны следует рассматривать как метаноугольные, подлежащие комплексному поэтапному освоению, с опережающей широкомасштабной добычей метана (в том числе для безопасной добычи угля). В угле много пор диаметром менее 10 нм. Поэтому уголь является наноколлектором природного газа, и борьба с выбросами природного газа и его добыча должны ориентироваться на работу с наноразмерными порами: закачка реагентов для смачивания угля, если не учитывать наноразмер пор при выборе хирреагентов, пройдет только по трещинам и открытым порам. Возможно поэтому и происходят катастрофы на угольных шахтах.

Особенно важным для КИН является учет наноразмерной формы поверхности пор, поскольку она влияет на капиллярный гистерезис в системе «нефть-газ-вода-порода», определяющий эффективность вытеснения нефти. Целенаправленным изменением структуры наноразмерных минеральных фаз коллектора можно увеличить КИН за счет уменьшения итогового значения капиллярного гистерезиса. Этот вывод создает основы прикладной наноминералогии.

Внедрение уже запатентованных нанотехнологий может обеспечить увеличение КИН до 0,45-0,50 (в 1,5-1,7 раза больше, чем ныне достигаемые 0,30-0,35), а их развитие – до 0,60-0,65. При этом КИН для традиционных запасов увеличиться на 0,20-0,25 до 0,60-0,70, для трудноизвлекаемых запасов – увеличение КИН составит 0,25-0,35 до 0,45-0,55.

Запасы газа в месторождениях газогидратов также невозможно освоить без регулирования свойств газогидратов на ионном уровне. Применение нанотехнологий позволит снизить энергозатраты на регулирования свойств газогидратов, переводить газ в газогидратную форму и торговать природным газом в газогидратном состоянии для частичной диверсификации экспорта газа и возможности обеспечить газом отдаленные поселки. Кроме того, это позволит утилизировать попутный нефтяной газ и низконапорный природный. Фактически речь идет о создании газогидратной отрасли ТЭК.

Из изложенного следует, что уже сейчас видны следующие направления развития нефтегазовой nanoиндустрии, основанной на целенаправленном регулировании наноявлений, определяющих фундаментальные параметры макросистем [4,5]: 1) Снижение обводненности добываемой нефти. 2) Увеличение коэффициента извлечения нефти (КИН). 3) Воздействие на глинистую составляющую пород. 4) Регулирование смачиваемости пород. 5) Воздействие на наноколлектора. 6) Снижение энергозатрат на закачку, подъем и подготовку нефти. 7) Разработка месторождений газогидратов. 8) Утилизация и торговля газом в газогидратном состоянии. 9) Утилизация низконапорного и попутного нефтяного газа. 10) Стабилизация неустойчивых коллекторов. 11) Большерасходные нанофильтры. 12) Применение нанокмпозиционных материалов. 13) Гидрофобные наножидкости и нанореагенты. 14) Регулирование состояния нанокластеров тяжелых углеводородов. 15) Упрочнение заколонного цемента при строительстве скважин. 16) Увеличение глубины переработки нефти. 17) Извлечение метана угольных пластов. 18) Экологическое улучшение работы всего нефтегазового комплекса.

Все это вместе взятое потребует использования современных методов контроля структуры и состава наноколлекторов (например, методы позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС) в ИТЭФ и ряд электрофизических методов в МИЭТ), так как структура порового пространства нефтегазоносных пород и метаноугольных месторождений определяется в первую очередь его геометрическими характеристиками, такими как состав, размеры нанопор и нанокапилляров и распределениями площадей и объемов пор по их по радиусам». Остановимся вначале на методах ПАС, которые могут позволить определять параметры и состав порового пространства горных пород, особенно для размеров в нанометровом диапазоне [6-20].

Позитроника, включающая также в свой состав и позитронную аннигиляционную спектроскопию (ПАС) (см., например, [6-20]), позволяет определять как электронную структуру совершенных кристаллов, так и различные несовершенства особо малых размеров в твердых телах и пористых системах, таких как вакансии, вакансионные кластеры и свободные объемы до одного кубического нанометра (нанообъекты пустоты). Она включает в себя в основном три метода: изучение временного распределения аннигиляционных фотонов (ВРАФ), углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ) и доплеровского уширения аннигиляционной линии с энергией 0,511 МэВ (ДУАЛ) [4].

Ниже рассматриваются методы определения размеров нанообъектов, их концентраций и химического состава среды, окружающей нанообъекты, по экспериментально измеряемым параметрам спектров ВРАФ и УРАФ для

позитронов, аннигилирующих в пористых системах и дефектных твердых телах на примере пористого кремния и пластин кремния, облученных протонами, на основе теоретических представлений, развитых в [6].

Показано, что одним из эффективных методов определения размеров нанообъектов (вакансий, вакансионных кластеров), свободных объемов пор, полостей, пустот, цилиндрических каналов и капилляров, их концентраций и химического состава в месте аннигиляции в горных породах (пористых системах, некоторых дефектных породах и особенно в породах с нанопорами) является метод позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС). В качестве примера дан краткий обзор экспериментальных исследований нанодефектов в кварце, порошках кварца, пористом кремнии, кремнии, облученных протонами [6-20].

Известно [6-10], что позитроны эффективно зондируют свободные объемы нанообъектов (в основном вакансии, дивакансии и поры) с размерами  $\leq 1-100$  нм как в металлах и сплавах, так и в полупроводниках и пористых системах.

Нами получены на основе модели движения частицы в плоскости, ограниченной круглой цилиндрической абсолютно непроницаемой стенкой [8-10], более правильные формулы для определения радиусов  $R_c$  цилиндрических (символ  $c$ ) и уточненные формулы радиусов сферических (символ  $sp$ ) нанопор по ширинам компонент углового распределения аннигиляционных фотонов (УРАФ)  $\theta_{1/2}$  и энергиям  $E_{1c}$  и  $E_{sp}$  основного состояния парапозитрония, аннигилирующего в порах в пористом кремнии и диоксиде алюминия

$$R_c [A] = \frac{21,1}{\theta_{1/2} [mrad]}, R_c [A] = \left( \frac{30,58}{E_{1c} (eV)} \right)^{1/2}, \quad (1)$$

$$R_{sp} [A] = \frac{16,6}{(\theta_{1/2}) [mrad]}, R_{sp} [A] = \left( \frac{18,85}{E_{1sp} (eV)} \right)^{1/2} \quad (2)$$

где  $R$  и  $\theta_{1/2}$  выражаются в  $\text{Å}$  и  $mrad$  соответственно.

Для экспериментального значения в пористом кремнии  $\theta_{1/2} = 0,8$  мрад [9], получили среднее значение радиуса цилиндрических пор  $R \approx 26,4 \text{ Å} \approx 3$  нм. Их концентрация в пористом слое оказалась равной  $\sim 5,6 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-3}$ .

Рассмотрение кинетической схемы аннигиляционных распадов и превращений позитронных и позитрониевых состояний в пористом слое позволяет получить связь между их скоростью захвата  $k_{tr}$  порами и интенсивностями компонент  $I_{g2}$  [6]

$$k_{tr} \cong I_{g2} \lambda_{cr}, \text{ c}^{-1} \quad (3)$$

Здесь  $\lambda_{cr} \approx \lambda_s = 0,8 \cdot 10^{10} \text{ c}^{-1}$  - скорость аннигиляции парапозитрония (p- $Ps$ ), интенсивность  $I_{g2} \approx 0,015$  (см. табл.1) в [6]). Таким образом по формуле (3) получаем среднюю скорость завата p- $Ps$  порами  $k_{tr} = 1,2 \cdot 10^8 \text{ c}^{-1}$ . С другой стороны скорость захвата  $k_{tr}$  p- $Ps$  может быть вычислена исходя из известного выражения

$$k_{tr} = \sigma_{tr} \nu N_{tr}, \text{ c}^{-1} \quad (4)$$

Здесь  $\sigma_{tr}$  - сечение захвата порами (дефектами) позитрония и позитрона;  $\nu$  - скорость теплового позитрония или позитрона;  $N_{tr}$  - средняя концентрация пор (дефектов) (в пористой (дефектной) области кристалла. Таким образом, из приведенных выражений возможно определить размеры величины  $k_{tr}$ ,  $N_{tr}$  и  $R_{tr}$  если известны такие параметры, как  $\lambda_1$ ,  $\sigma_{tr}(i)$ ,  $\nu$ . Тепловые скорости позитрония, и позитрона при температуре  $T = 293K$  были оценены под формуле  $\nu = (8k_0 T / \pi m_+^*)^{1/2} \approx 7,52 \cdot 10^6 \text{ cm/s}$  для позитрония, для позитрона  $\nu \approx 1,05 \cdot 10^7 \text{ cm/s}$ , где  $k_0$  – постоянная Больцмана,  $m_+^* \approx 2m_0$  - эффективная масса позитрония,  $m_+^* \approx m_0$  - эффективная масса позитрона,  $m_0 = 9,1 \cdot 10^{-28} \text{ г}$  - масса свободного позитрона. Принимали, что сечение захвата позитронов и позитрония порами равняется величине площади геометрического сечения поры (дефекта)  $\sigma_{tr} \approx \pi R_{tr}^2 = 1,256 \cdot 10^{-13} \text{ см}^2$ . С этими значениями параметров  $R_{tr} \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ см}$ ,  $k_{tr}$  и  $\nu$  по формулам (3) и (4) определили концентрации пор, служащих центрами захвата p -  $Ps$   $N_{tr} \approx 1,27 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$ .

Эксперименты показали [6-20], что основная часть позитронов аннигилирует в пористом кремнии из позитронных состояний непозитрониевого типа в объеме пор. Будем считать, что такого типа позитронные состояния являются позитронами, локализованными в объеме пор таким же образом, как и атомы позитрония. В этом случае формулы (1) и (2) имеют вид

$$R_c [A] = \left( \frac{61,1}{E_{1sp} (eV)} \right)^{1/2}, \quad (5)$$



$$R_{sp} [A] = \left( \frac{37,7}{E_{1,sp} (eV)} \right)^{1/2} \quad (6)$$

Исследованные методом позитронной аннигиляционной спектроскопии (ПАС) образцы пористого кремния с размерами  $10 \times 20 \times 10 \text{ мм}^3$  были вырезаны из целых пластин кремния p – типа с ориентациями  $\langle 111 \rangle$ . Для исследований были выбраны четыре образца, определяемые нами как 164 (1) (начальный монокристаллический образец), PR86, PR16, PR17 (образцы пористого кремния, полученные методом электрохимической обработки в растворах  $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  при силе тока  $J=10$  и  $20 \text{ mA/cm}^2$ ). Параметры исследованных пластин кремния и основных особенностей спектров УРАФ приведены в табл.1-3.

Таблица 1

Характеристики и параметры исследуемых образцов пористого кремния p-типа

№ п/п	Характеристика образца
164(1)	Si-монокристаллический, зеркальный, p-тип, $\langle 111 \rangle$ , КДБ-10, $h=340 \text{ мкм}$ .
PR86	Si-пористый, $\langle 111 \rangle$ , КДБ-0,03, $h=360-370 \text{ мкм}$ , $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}=2:1$ , $J=20 \text{ mA/cm}^2$ , Пористость $\sim 45\% \pm 3\%$
PR16	Si, пористый, $\langle 111 \rangle$ , КДБ – 0,03, $h = 20 \text{ мкм}$ , $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 1 : 1$ , $J = 10 \text{ mA/cm}^2$ , $T = 2400 \text{ }^\circ\text{C}$
PR17	Si, пористый, $\langle 111 \rangle$ , КДБ – 0,03, $h = 20 \text{ мкм}$ , 10 мин в $\text{PdCl}_2$ , $\text{HF}:\text{C}_2\text{H}_5\text{OH} = 1 : 1$ , $J = 10 \text{ mA/cm}^2$ , $T = 2400 \text{ }^\circ\text{C}$

Таблица 2

Параметры исследуемых образцов монокристаллического и пористого кремния и характеристики спектров УРАФ

№ п/п	$I_{g2}=S_{g1}/S_{sum}$	$I_{g1}=S_{g1}/S_{sum}$	$\Gamma_{g1}$ , мрад	$I_p=S_p/S_{sum}$	$\Gamma_p$ , мрад
164(1)		$0.665 \pm 0.035$		$0.335 \pm 0.031$	
PR86	$0.015 \pm 0.003$	$0.493 \pm 0.052$		$0.492 \pm 0.044$	
PR16		$0.483 \pm 0.045$	$9.01 \pm 0.09$	$0.517 \pm 0.041$	$5.60 \pm 0.01$
PR17		$0.511 \pm 0.051$	$8.98 \pm 0.09$	$0.489 \pm 0.044$	$5.57 \pm 0.01$

Таблица 3

Характеристики спектров УРАФ исследуемых образцов пористого кремния p-типа и параметры цилиндрических пор

	№ образца	$I_p=S_p/S_{sum}$	$k_{tr} \cdot 10^{-9}, \text{ c}^{-1}$	$R_{tr}, \text{ \AA}$	$N_{tr} \cdot 10^{-17}, \text{ см}^{-3}$
	164(1)	$0.335 \pm 0.031$			
	PR86	$0.493 \pm 0.052$	7.21	13	1.31
	PR16	$0.483 \pm 0.045$	6.76	13	1.23
	PR17	$0.511 \pm 0.051$	8.00	13	1.55

Примечание к табл. 1-3:  $h$  – толщина пластин кремния,  $\langle 111 \rangle$  - их кристаллографическая ориентация, КДБ – 0,03 – марка пластин кремния, легированных бором с удельным сопротивлением  $0,03 \text{ ом}\cdot\text{см}$ ,  $I_g = S_{gi}/S_{sum}$  ( $i=1,2$ ) – интенсивности гауссовых компонент, а  $I_p = S_p/S_{sum}$  – интенсивность параболической компоненты в спектрах УРАФ ( $S_{sum}$  – суммарная площадь экспериментального спектра УРАФ, а  $S_{gi}$  и  $S_p$  – соответственно площади гауссовых и параболической компонент в этом спектре).  $J$  – плотность тока.  $(\theta_{1/2})_{g2} = 0,8$  мрад,  $(\theta_{1/2})_{g1} = 10,9$  мрад,  $(\theta_{1/2})_p \approx 7$  мрад - ширины гауссовых ( $g_i, i=1,2$ ) и параболической компонент.

Из табл.1-3 видим, что разность между интенсивностями гауссовых компонент  $I_g$ (окисленная), то есть окисленными пластинами кремния, и  $I_g$ (не окисленная) (начальная не окисленная пластина) в спектрах УРАФ, может быть записана в виде

$$\Delta I_g = I_g(\text{окисленная}) - I_g(\text{не окисленная}) = k_{tr} \tau_1 \quad (7)$$

Таким образом среднее значение скорости захвата позитронов порами равна

$$k_{tr} = \Delta I_g / \tau_1, \quad (8)$$

Значения  $k_{tr}$ , рассчитанные по формулам (7) и (8) приведены в табл.3. Исходя из этих значений  $k_{tr}$  по формуле (4) были рассчитаны значения концентраций пор  $N_{tr}$ . Их значения также приведены в табл.3.

Из выражений (1), (2) и (5), (6) также видим, что по энергии в месте аннигиляции на внешних валентных электронах  $E$  можно также найти радиусы пор, используя только данные УРАФ. Для этого приведем выражение, связывающее энергию аннигилирующей электронно-позитронной пары с полной шириной на полувысоте [1]

$$E = 6,9 \cdot 10^{-2} (\theta_{1/2})_g^2 \quad (9)$$



Здесь  $E$ - энергия в эВ, а  $(\theta_{1/2})_g$  - полная ширина кривой УРАФ на полувысоте в мрад. Так для образцов кремния измеренная величина  $(\theta_{1/2})_g$  составила 11,1 мрад и ей соответствует средняя энергия аннигилирующей электрон-позитронной пары, равная  $E = 8,5$  эВ и обусловленная средней энергией электронов внешней оболочки атома кремния на стенке поры, которую можно принять равной энергии электрона на внешней оболочке изолированного атома кремния. При этом учитывается, что до аннигиляции позитрон и позитроний успевают термализоваться и измеренная энергия определяется, в основном, энергией электрона. Табличное значение энергии для  $Si(3p^2 -^3 P_0)$  электронной внешней оболочки кремния  $E(Si) = 8,1517$  эВ [6]. Как видим, согласие этих величин энергий  $E$  и  $E(Si)$  вполне удовлетворительное. Таким образом, позитроны аннигилируют в основном на внешних валентных электронах атомов кремния «стенки» поры. Отсюда можно сделать заключение о том, что метод ПАС может определять химический состав «стенок» нанообъектов в конденсированной фазе (для рассматриваемого нами случая нанокolleкторов пластов месторождений нефти, угля и газа).

Можно полагать, что разность величин  $E - E(Si) = 0,35$  эВ обусловлена вкладом энергии связи позитрона, находящегося в поре в энергию аннигилирующих электронно-позитронных пар. В этом случае для определения размера цилиндрических пор рационально использовать выражение (9)

$$R_c = \left( \frac{61,1}{E - E(Si)} \right)^{1/2}, \quad (10)$$

Таким образом, при значении  $E = E - E(Si) = 0,35$  эВ размер пор равен  $13,2 \text{ \AA}$ .

Далее со значением  $R_{tr} \approx 13,2 \text{ \AA}$  определили среднее значение сечения захвата позитрона дефектами  $\sigma_{tr} \approx 5,5 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$ . Для оценок средних значений концентраций пор приняли  $k_{tr} \approx 7,9 \cdot 10^8 \text{ с}^{-1}$ ,  $\sigma_{tr} \approx 5,5 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2$  и  $\nu \approx 10^7 \text{ см/с}$ . Получили значение концентрации пор  $N_{tr} = k_{tr} / \nu \cdot \sigma_{tr} \approx 1,4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Зная общую пористость (45%) [7-10] и средний объем поры, можем оценить концентрацию пор из простых геометрических соображений и, сравнив ее с рассчитанной  $N_{tr}$ , проверить достоверность принятых приближений. Определенному нами по формуле (2) среднему размеру пор  $R_{tr} \approx 3 \text{ нм}$  соответствует их средний объем  $V_{tr} = \pi R_{tr}^2 \cdot h \approx 2,8 \cdot 10^{-16} \text{ см}^3$ . Здесь  $h$  - толщина слоя пористого кремния. Для случая «плотной упаковки» таких пор их концентрация исходя из величины общей пористости 0,45 могла бы быть равной  $N_{tr}^G \sim 0,45 / V_{tr} \sim 1,6 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Расхождения величины  $N_{tr}^G$  с нами определенной концентрацией  $N_{tr} = 1,4 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$  не очень велико. Таким образом, изученные методом УРАФ образцы пористого кремния представляют собой микропористые цилиндрические нанообъекты с размерами порядка 3 нм и концентрацией примерно  $10^{15} \text{ см}^{-3}$ .

Согласно этим данным для пористого кремния можно полагать, что эффективными свободными центрами (областями захвата позитронов и позитрония) являются скорее всего сферические и цилиндрические ультрамикропоры и микропоры с размерами порядка 2 нм, находящимися в пористом слое кремния. Зная общую пористость (45%) и средний объем поры, можем оценить концентрацию пор из простых геометрических соображений и, сравнив ее с рассчитанной  $N_{tr}$ , проверить достоверность принятых приближений. Определенному нами среднему размеру цилиндрических пор  $R_{tr} \approx 2 \text{ нм}$  соответствует ее средний объем  $V_{tr} = \pi R_{tr}^2 \cdot h = 1,26 \cdot 10^{-16} \text{ см}^3$ . Здесь  $h$  - толщина слоя пористого кремния. Для случая «плотной упаковки» таких пор их концентрация исходя из величины общей пористости 0,45 могла бы быть равной  $N_{tr}^G \sim 0,45 / V_{tr} = 3,6 \cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Расхождения величины  $N_{tr}^G$  с нами определенными концентрациями  $N_{tr} = 3,21 \cdot 10^{14} \text{ см}^{-3}$  [8] не очень велики, что говорит о правильности предложенной модели. Таким образом, изученные методом позитронной аннигиляционной спектроскопии характеристики образца пористого кремния говорят о том, что здесь имеют место микропористые цилиндрические объекты с размерами порядка 2 нм и концентрацией порядка  $10^{15} \text{ см}^{-3}$ . Полученные результаты позволяют надеяться, что дальнейшие исследования дадут возможность связать параметры аннигиляционных спектров с размерами пор и их топологией.

Таким образом показано, что один из эффективных методов определения средних размеров цилиндрических и сферических нанообъектов  $\bar{R}$  (свободных объемов пор, полостей, пустот и т.д.), их средних значений концентрации  $\bar{N}$  и химического состава в месте аннигиляции позитрона в пористых системах и некоторых дефектных материалах (и в большом числе технически важных материалах и наноматериалах) является метод позитронной аннигиляционной спектроскопии. Это позволяет определять средние значения доли свободного порового пространства  $\bar{V}_{rad} = (4/3)\pi\bar{R}^3 \cdot \bar{N}$ , имеющие место в нефтегазоносных и метаноугольных породах. Обсуждается идея поиска корреляции между значениями  $\bar{V}_{rad}$  и динамикой изменений значений КИН. Установлено, что для микроструктуры нефтегазовых месторождений (пород) важными показателями являются общая пористость и проницаемость. Прямой

связи общей пористости с проницаемостью нет, но существует корреляционная связь между пористостью и проницаемостью. С повышением общей пористости повышается проницаемость породы, за счет увеличения эффективной пористости и увеличения количества крупных пор. Это приводит к резкому увеличению величин КИН при закачке воды и других специальных растворов для вытеснения нефти из пластов пород. Особая роль развития нанотехнологий становится необходимой при освоения нанорезервуаров (наноколлекторов) – например, нефтяных пластов баженовской свиты Сибири, газовых и метанугольных пластов с наноразмерными поровыми каналами.

Дается краткий обзор экспериментальных исследований нанообъектов в образцах кремния различных марок, подтверждающих сделанные предположения. При этом важную роль приобретают экспериментальными методы определения электрофизических параметров кремния. Особое значение при этом имеет поиск критичных дефектов, сильно нарушающих его электрофизические свойства ([http://www.physics-online.ru/php/paper.phtml?jrnid=null&paperid=8127&option\\_lang=rus](http://www.physics-online.ru/php/paper.phtml?jrnid=null&paperid=8127&option_lang=rus)).

Следует также остановиться на возможностях применений электрофизических методов, развиваемых в МИЭТ, для исследования наноявлений в нефтегазодобыче. Они должны включать в себя проведение исследований и разработку новых конструкций и технологий изготовления методов контроля и измерения параметров МЭМС в герметичном исполнении, а именно микрогирископов, микроакселерометров, инклинометров, микрозеркал (сложно-функциональных микроприводов), микромеханических датчиков давления. Эти перечисленные приборы в герметичном исполнении несомненно позволяют решать задачи аналитического контроля окружающей среды в процессах нефтегазодобычи.

#### **Список литературы**

1. А.Я.Хавкин. Наноявления в в нефтегазодобыче. Вестник РАН. 2009. Т.79. №6. С.519-522.
  2. И.Н.Евдокимов, А.П.Лосев. Нефтегазовые нанотехнологии для разработки и эксплуатации месторождений. Учебное пособие для РГУ нефти и газа им. И.М.Губкина. М.: РГУ, 2007.
  3. Н.П.Лаверов. Топливо-энергетические ресурсы. Вестник РАН. 2006. Т.76. №5.
  4. А.Я.Хавкин. Регулируемые наноявления в добыче нефти и газа. Полный отчет о Первой ежегодной научно-технической конференции НОР «Развитие нанотехнологического проекта в России: состояние и перспективы». 11. Другие сферы применения нанотехнологий. [http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase\\_id=661090](http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase_id=661090)
  5. Г.К.Сафаралиев, А.Я.Хавкин, В.Л.Севостьянов. Работа секции «Нанотехнологии для нефтегазового комплекса» НОР в 2008-2009гг. Полный отчет о Первой ежегодной научно-технической конференции НОР «Развитие нанотехнологического проекта в России: состояние и перспективы». 11. Другие сферы применения нанотехнологий. [http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase\\_id=661090](http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase_id=661090)
  6. Е.П.Прокопьев. Развитие теоретических основ методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для исследования размеров и концентраций нанообъектов в конденсированной фазе. Полный отчет о Первой ежегодной научно-технической конференции НОР «Развитие нанотехнологического проекта в России: состояние и перспективы». 8. Нанотехнологии группы Б. [http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase\\_id=661090](http://ntsr.info/nor/bulletin/seminars/?ID=1601&phrase_id=661090), <http://www.ntsр.info/upload/My/nauka/pozan.doc>.
  7. YU.A. Chaplygin, V.I. Grafutin, E.P. Svetlov-Prokopiev, S.P. Timoshenkov. Positronics And nanotechnologies: possibilities of studying nano-objects in technically important materials and nanomaterials. in book: advances in nanotechnology. V.1, 2010. Editors: E. J. Chen and N. Peng. Nova science publishers, New York, 2010. P.191-208. [https://www.novapublishers.com/catalog/product\\_info.php?cpath=23\\_96&products\\_id=10207&oscsid=9c7f4bdf96ee0b265245e976a7c8d2fc](https://www.novapublishers.com/catalog/product_info.php?cpath=23_96&products_id=10207&oscsid=9c7f4bdf96ee0b265245e976a7c8d2fc)
  8. В.И. Графутин, О.В. Илюхина, Г.Г. Мясичева, Е.П. Прокопьев, С.П. Тимошенко, Ю.В. Фунтиков, Ю.А. Чаплыгин. Применение и развитие методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для определения размеров нанообъектов в пористых системах, дефектных материалах и наноматериалах. Наноструктуры. Математическая физика и моделирование, 2010, том 2, № 2, с.15–42. [http://www.nano-journal.ru/%D0%97%D0%B0%D0%B3%D0%BB%D0%B0%D0%B2%D0%BD%D0%B0%D1%8F\\_%D1%81%D1%82%D1%80%D0%B0%D0%BD%D0%B8%D1%86%D0%B0](http://www.nano-journal.ru/%D0%97%D0%B0%D0%B3%D0%BB%D0%B0%D0%B2%D0%BD%D0%B0%D1%8F_%D1%81%D1%82%D1%80%D0%B0%D0%BD%D0%B8%D1%86%D0%B0)
  9. В.И.Графутин, О.В.Илюхина, Г.Г.Мясичева, Е.П.Прокопьев, С.П.Тимошенко, Ю.В.Фунтиков, Р.Бурцл. Позитроника и нанотехнологии: возможности изучения нанообъектов в материалах и наноматериалах методом позитронной аннигиляционной спектроскопии. Ядерная физика. Т.72. №10. 2009. С.1730-1739.
  10. Р.Бурцл, В.И.Графутин, О.В.Илюхина, Г.Г.Мясичева, Е.П.Прокопьев, С.П.Тимошенко, Ю.В.Фунтиков, Возможности изучения нанообъектов в пористом кремнии и подложках кремния, облученных протонами, методом позитронной аннигиляционной спектроскопии. Физика твердого тела. 2010. Т.52. Вып.4. С.651-654.
  11. В. И. Графутин, Е. П. Прокопьев, В. Кршак, Р. Бурцл, П. Хэнер, А. Земан, О. В. Илюхина, Д. Ерак, М. А. Могилевский, Г. Г. Мясичева, Ю. В. Фунтиков. Изучение конструкционных материалов активной зоны реакторов методами позитронной аннигиляционной спектроскопии. Ядерная физика. 2011, Т.74. №2. С.1-12.
  12. В.И.Графутин, Е.П.Прокопьев, Ю.В.Фунтиков, О.В.Илюхина, Г.Г.Мясичева. Возможное применение методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для исследования наноявлений в нефтегазодобыче. ID=1278405194.
- Научная Онлайн-Библиотека Порталус:**  
[http://www.portalus.ru/modules/science/rus\\_readme.php?subaction=showfull&id=1278405194&archive=&start\\_from=&ucat=19&](http://www.portalus.ru/modules/science/rus_readme.php?subaction=showfull&id=1278405194&archive=&start_from=&ucat=19&) <http://www.portalus.ru/modules/science/data/files/prokopiev/Paper-Prokoev-EP.pdf>
13. В.И. Графутин, О.В. Илюхина, Г.Г. Мясичева, Е.П. Прокопьев, Ю.В. Фунтиков. Возможное развитие методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для исследования наноявлений в нефтегазодобыче. Международный

научно-технический конгресс «Энергетика в глобальном мире» • 16–18 июня 2010 г. • Россия • г. Красноярск. С.336-337. <http://conf.sfu-kras.ru/uploads/e-congress-2010%20part%202.pdf#page=78>

14. Е.П.Прокопьев. Развитие методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для определения размеров нанобъектов в пористых системах, дефектных материалах и наноматериалах. ID=1263401871. Научная онлайн-библиотека: <http://www.portalus.ru/modules/science/data/files/prokopiev/prokopev-pos-report.doc>

15. В.И.Графутин, Е.П.Прокопьев, Ю.В.Фунтиков. Развитие методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для определения размеров нанобъектов в пористых системах, дефектных материалах и наноматериалах. Обсуждение современных проблем в мире физики/ блог. прокопьев евгений петрович. рубрика: химическая физика, физическая химия и материаловедение [http://www.physics-online.ru/php/paper.phtml?jmid=null&paperid=8127&option\\_lang=rus](http://www.physics-online.ru/php/paper.phtml?jmid=null&paperid=8127&option_lang=rus)

16. В.И.Графутин, Е.П.Прокопьев, Ю.В.Фунтиков. Развитие методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для определения размеров нанобъектов в пористых системах, дефектных материалах и наноматериалах. НАУЧНАЯ онлайн-библиотека порталус: <http://www.portalus.ru/modules/science/data/files/prokopiev/prokopev-pos-report.doc>

17. .П.Прокопьев, В.И.Графутин, С.П.Тимошенко, Ю.В.Фунтиков. Определение методом ПАС радиусов пор и их концентраций в пористом кремнии и кремнии, облученном протонами. модели сферической и цилиндрической пор. научная онлайн-библиотека порталус: [http://www.portalus.ru/modules/science/rus\\_readme.php?subaction=showfull&id=1274458775&archive=&start\\_from=&ucat=19&category=19](http://www.portalus.ru/modules/science/rus_readme.php?subaction=showfull&id=1274458775&archive=&start_from=&ucat=19&category=19)

18. В.И.Графутин, О.В.Илюхина, Г.Г.Мясищева, Е.П.Прокопьев, Ю.В.Фунтиков. Возможное применение методов позитронной аннигиляционной спектроскопии для исследования наноявлений в нефтегазодобыче. Азербайджано–Российский симпозиум с международным участием «Катализ в решении проблем нефтехимии и нефтепереработки». 28-30 сентября, 2010 г. Азербайджан, Баку. [http://conf.nsc.ru/view/baku-2010/\\$N:jsessionId=04BBBBF0E08F77023397121B7FEA77093, Preliminary Scientific Program.pdf](http://conf.nsc.ru/view/baku-2010/$N:jsessionId=04BBBBF0E08F77023397121B7FEA77093, Preliminary Scientific Program.pdf), <http://conf.nsc.ru/files/conferences/baku-2010/27591/scientific%20program-BAKU.pdf>

19. В.И.Графутин, И.Н.Мешков, Е.П.Прокопьев, Н.О.Хмелевский, С.Л.Яковенко. Определение размеров дефектов вакансионного типа в ангстремных диапазонах методами позитронной аннигиляционной спектроскопии [http://www.portalus.ru/modules/science/rus\\_readme.php?subaction=showdate&id=1284930000&archive=&start\\_from=&ucat=&](http://www.portalus.ru/modules/science/rus_readme.php?subaction=showdate&id=1284930000&archive=&start_from=&ucat=&)

20. В.И.Графутин, И.Н.Мешков, Е.П.Прокопьев, С.П.Тимошенко, Н.О.Хмелевский, Ю.А.Чаплыгин, С.Л.Яковенко. Определение размеров дефектов вакансионного типа в ангстремных диапазонах методами позитронной аннигиляционной спектроскопии. Тезисы докладов. 2-я ежегодная научно-техническая конференция Нанотехнологического общества России «Перспективы развития в России НБИК-технологий как основного научного направления прорыва к шестому технологическому укладу» при поддержке РНЦ «Курчатовский институт», 14-15 октября 2010 г., г. Москва, РНЦ КИ. С.? В печати

## **ДЕТЕКТОРЫ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ НА ОСНОВЕ ПРОСТЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ**

В.А. Варлачев, Е.Г. Емец, Е.С. Солодовников

*Физико-технический институт Национального исследовательского Томского политехнического университета.  
Россия, 634050, Томск, проспект Ленина 30.*

*Показано, что изменение удельной электрической проводимости в простых полупроводниках на примере монокристаллов кремния после их облучения и отжига радиационных дефектов прямо пропорционально флюенсу тепловых нейтронов. Это обстоятельство положено в основу метода измерения нейтронного потока. При этом коэффициент пропорциональности зависит от спектра нейтронов, но не зависит от исходной удельной электрической проводимости, что значительно упрощает калибровку детекторов. Среднеквадратичное отклонение при измерении флюенса тепловых нейтронов в относительных и абсолютных единицах составило 4% и 8% соответственно.*

В области радиационных технологий требуется осуществлять контроль флюенса тепловых и быстрых нейтронов. Активационные методы [1] наиболее универсальны и позволяют определять абсолютные значения флюенса нейтронов без дополнительной калибровки. Однако эти способы очень трудоемки и требуют специальной аппаратуры. Их часто используют для калибровки других способов измерения флюенса нейтронов. В одной из наших работ [2] предложен достаточно простой метод измерения флюенса быстрых нейтронов с помощью простых полупроводников на примере монокристаллического кремния. Быстрые нейтроны создают в кремнии сложные радиационные дефекты, которые уменьшают его проводимость. Измеряя проводимость до и после облучения, определяют изменение проводимости, которое линейно связано с флюенсом быстрых нейтронов. Это и положено в основу метода измерения потока нейтронов.

В данной статье предлагается одну и ту же шайбу монокристаллического кремния использовать для определения флюенса не только быстрых нейтронов, но и тепловых. Для этого необходимо после определения флюенса быстрых нейтронов отжечь радиационные дефекты, т.е. убрать влияние быстрых нейтронов на удельное

электрическое сопротивление (у.э.с) кремния. В этом случае может проявиться эффект воздействия тепловых нейтронов на у.э.с. В самом деле, под действием тепловых нейтронов в монокристаллическом кремнии образуется фосфор



При этом концентрация ядер фосфора пропорциональна флюенсу тепловых нейтронов

$$N_P = N_{Si} \sigma F \quad (2)$$

где  $\sigma$  - сечение реакции радиационного захвата тепловых нейтронов на  $^{30}\text{Si}$ ,  $N_{Si}$  - концентрация ядер  $^{30}\text{Si}$ . Фосфор в монокристаллическом кремнии является донорной примесью, поэтому в кремнии n-типа он увеличивает проводимость, а в кремнии p-типа - уменьшает. Из выражения (2) следует, что между изменением проводимости и флюенсом нейтронов  $F$  существует линейная связь:

$$F = K(1/\rho - 1/\rho_0) \quad (3)$$

При этом коэффициент пропорциональности  $K$  один и тот же для любого исходного у.э.с.  $\rho$ . Конечное у.э.с.  $\rho$  измеряется после облучения и отжига радиационных дефектов.

С помощью существующей с 1984 г. технологии нейтронно-трансмутационного легирования кремния [3] были изготовлены шайбы монокристаллического кремния. Измерения среднего значения у.э.с. на торцах шайб проводились 4-зондовым методом [4] по 15 точкам с погрешностью 2%. Измерения выполнялись до и после облучения и отжига радиационных дефектов при температуре 800°C в течение 2 ч. Контроль флюенса тепловых нейтронов проводили с помощью штатных камер деления КтВ-4. Калибровка осуществлялась по золоту с помощью стандартного набора активационных детекторов по методике, рекомендованной Всероссийским научно-исследовательским институтом физико-технических и радиационных измерений.

Для 31 детектора были выполнены измерения удельных электрических сопротивлений до ( $\rho_0$ ) и после ( $\rho$ ) облучения при различных значениях калиброванных потоков тепловых нейтронов  $F_1$ , с последующим отжигом. Результаты приведены на рисунке и в таблице.

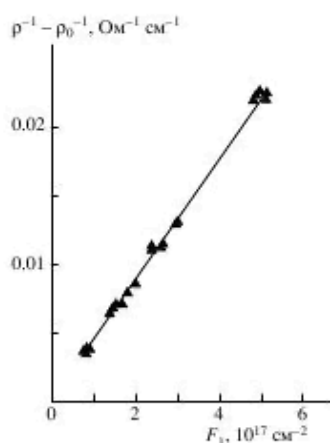


Рис 1. Зависимость разности проводимостей от величины флюенса  $F_1$ . Прямая линия аппроксимация экспериментальных данных.

Таблица 1.

№	$\rho_0$ Ом см	$\rho$ Ом • см	$F_1$ $10^{17}$ $\text{см}^{-2}$	$K$ , $10^{17}$ Ом/см	$\delta$ .%	№	$\rho_0$ Ом см	$\rho$ Ом • см	$F_1$ $10^{17}$ $\text{см}^{-2}$	$K$ , $10^{17}$ Ом/см	$\delta$ .%
1	3500	243.9	0.865	226.8	1.8	17	3850	44.6	5.101	230.2	3.3
2	4200	244.3	0.840	218.0	-2.2	18	3100	44.0	4.896	218.4	-2.0
3	3100	244.0	0.852	225.7	1.2	19	3550	44.6	4.815	217.9	-2.2
4	3750	243.9	0.838	218.7	-1.9	20	3450	43.3	4.950	216.9	-17
5	3450	243.1	0.872	228.1	2.3	21	3450	87.0	2.407	214.9	-3.6
6	3450	243.7	0.865	226.8	1.8	22	1500	84.0	2.575	229.1	18
7	3150	243.3	0.866	228.2	2.4	23	330	86.1	1.952	227.6	11
8	3200	242.7	0.831	218.2	-2.1	24	2850	87.2	2.407	216.6	-2.8
9	4350	250.8	0.820	218.2	-2.1	25	3450	85.0	2.658	231.5	3.9
10	3750	152.8	0.800	216.9	-2.7	26	7200	150.9	1.401	216.0	-3.1
11	3600	135.2	1.651	231.9	4.0	27	3050	138.9	1.481	215.4	-3,4
12	1800	126.4	1.601	217.6	-14	28	3100	139.4	1.488	217.1	-2.6
13	3200	129.5	1.602	216.2	-3.0	29	2150	73.4	3.001	228.0	2.3
14	3850	132.1	1.650	225.8	13	30	5450	75.3	3.001	229.0	17
15	16000	125.7	1.815	231.3	3.8	31	2250	73.4	2.974	225.6	1.2
16	3300	43.6	5.148	2273	2.0						

На рисунке приведена зависимость разности проводимостей  $d = 1/\rho - 1/\rho_0$  от величины потока  $F_I$ . Указанная на рисунке ошибка соответствует точности измерения удельного сопротивления и составляет 3%. Эти данные достаточно хорошо  $\chi^2 / ndf \approx 1.3 \pm 0.2$  описываются соотношением (3) при значении калибровочного коэффициента  $K_{cal} = 223.2 \pm 2.2$ .

Разброс калибровочных коэффициентов оценивался как отклонение калибровочных коэффициентов для каждого детектора от  $K_{cal}$ :  $\delta[\%] = (K/K_{cal} - 1)$ . Результаты вычислений приведены в колонках К и  $\delta$  таблицы. Среднее значение относительного отклонения составило  $\sim 4\%$ .

Согласно выражению (3) ожидаемая точность измерения величины неизвестного потока нейтронов определяется точностью калибровочного коэффициента (4%) и точностью измерения разности проводимостей (3%) и может составить 6-8%.

Были также проведены эксперименты по определению режима отжига радиационных дефектов, генерированных быстрыми нейтронами. Очевидно, что этих дефектов тем больше, чем жестче спектр и больше флюенс нейтронов. Температура отжига варьировалась от 600 до 900°C, а флюенс тепловых нейтронов - от  $5 \cdot 10^{15}$  до  $10^{18}$  см<sup>-2</sup>. Облучение проводили в канале реактора ГЭК-4. При флюенсе тепловых нейтронов до  $10^{16}$  см<sup>-2</sup> для отжига достаточно 30 мин при температуре 650°C. При флюенсе  $10^{17}$  см<sup>-2</sup>; температура отжига повышалась до 800°C, а время отжига - до 1.5 ч. С дальнейшим ростом флюенса. вплоть до  $10^{18}$  см<sup>-2</sup> дефекты отжигались при той же температуре, но время отжига увеличилось до 2 ч.

Таким образом, приведенные выше экспериментальные данные показали, что существует линейная зависимость между изменением проводимости и флюенсом тепловых нейтронов. Это позволяет осуществить калибровку детектора, даже при единственном облучении шайбы кремния с любым исходным у.э.с. Калибровка остается постоянной для измеряемого спектра нейтронов и не зависит от исходного у.э.с. Каждый монокристалл можно использовать многократно. Физическая информация (удельное электрическое сопротивление), в отличие, например, от активационного метода, сохраняется бесконечно долго, что позволяет в любой момент времени перепроверить полученный результат измерения. Кроме того, одна и та же шайба кремния после облучения содержит информацию как о флюенсе быстрых нейтронов [2], так и (после отжига) о флюенсе тепловых нейтронов.

**Список литературы:**

1. Крамер-Агеев Е.А. Трошин В.С. Тихонов Е.Г. Активационные методы спектрометрии нейтронов. М.: Атомиздат. 1976.
2. Варлачев В.А., Солодовников Е.С. II ПТЭ. 2008. //№ 2. С. 17.
3. Варлачев В.Л., Кузин А.Н., Лыхин С.В. и др. // Атомная энергия. 1995. Т. 79. Вып. I. С. 38.
4. Фистуль В.И. Введение в физику полупроводников. М.: Высшая школа, 1984. С.38

## ДИНАМИКА НАКОПЛЕНИЯ НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ В СИСТЕМАХ ХРАНЕНИЯ И ТРАНСПОРТИРОВКИ ОТРАБОТАННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА

Кравченко Н.И., Губайдулин И.М., Беденко С.В.

*Научный руководитель: ст. преподаватель, к.ф.-м.н. Беденко С.В.*

*Национальный исследовательский Томский политехнический университет, Томск, Россия*

Задача обеспечения своевременного и безопасного вывода из эксплуатации ядерных и радиационно-опасных объектов рассматривается как приоритетная и принципиально важная для планируемого широкомасштабного развития атомной отрасли. В этой связи актуальной является разработка концептуальных подходов по выводу из эксплуатации объектов различного назначения, включая системы и элементы систем хранения отработанного ядерного топлива (ОЯТ).

Проблему специального обращения с ОЯТ можно представить как совокупность двух основных задач: первая задача – это задача на критичность, т. е. обоснование ядерной безопасности ядерных и радиационно-опасных объектов, содержащих ОЯТ. Сегодня эта задача успешно решена. В настоящее время широко используются различные пакеты прикладных программ, реализующие метод Монте-Карло: MCU-RFFI, MCNP, SCALE, MMKFK-2. С их помощью можно рассчитывать значение эффективного коэффициента размножения в различных технических системах, содержащих ОЯТ с большой точностью ( $\sim 10^{-5}$ – $10^{-6}$ ). Вторая задача – это изучение радиационных характеристик, моделирование радиационной обстановки вблизи ядерно- и радиационно-опасных объектов содержащих ОЯТ. Эта задача решена не полностью. В частности имеются определенные трудности с определением нейтронной компоненты радиационных характеристик ОЯТ [1].

Ввод в эксплуатацию новых видов топлива (U, Pu)O<sub>2</sub>, UN/(U-Pu)N, UC/(U-Pu)C потребует разработку новых конструкций не только ТВЭЛ и ТВС, но и транспортных контейнеров (ТУК) для транспортировки керамического ОЯТ, имеющих иные защитные характеристики. Это вызвано тем, что радиационные характеристики облученных перспективных керамических урановых и уран-плутониевых соединений значительно отличаются от таковых для широко используемого в настоящее время оксидного уранового топлива. Последующее долговременное хранение и переработка ОЯТ требуют выработки рекомендаций по обращению с этими видами ОЯТ. Переход на более

продолжительные топливные кампании на реакторах типа ВВЭР-1000 приводит к повышению глубины выгорания топлива. Это с одной стороны увеличивает экономическую эффективность использования топлива. С другой - приводит к повышению концентрации продуктов деления, активации и трансурановых элементов в облученном ядерном материале, что влечет за собой повышение радиационной опасности. Особый практический интерес вызывает изучение возможностей от нейтронов, так как нейтроны, наряду с гамма-квантами, обладают наибольшей проникающей способностью. Уже сегодня на АЭС с блоками ВВЭР-1000 имеются сборки, превышающие по глубине выгорания номинальные параметры транспортного контейнера; во-вторых, степень защиты от излучения сборок с большой глубиной выгорания не была проверена экспериментально.

В данной работе вместе с разработкой процедур расчета ядерно-физических процессов, приводящих к формированию поля нейтронного излучения вблизи перспективных керамических урановых топлив для действующих и усовершенствованных ядерных реакторов, будет проведен расчетный анализ дифференциальных и интегральных характеристик полей излучения вблизи систем хранения и транспортировки ОЯТ.

Разработка процедур и моделей расчета дозовых характеристик ОЯТ позволит создать информационные базы данных, с помощью которых можно будет прогнозировать состав и параметры полей излучения в системах хранения и транспортировки, которые в итоге будут реконструированы, либо выведены из эксплуатации.

Расчетные исследования показали, что в элементах конструкции систем хранения и транспортировки (бетон, сталь) наибольшую радиологическую опасность представляют  $^{25}\text{Mn}^{54}$  и  $^{27}\text{Co}^{60}$ , так как являются источниками  $\gamma$ -квантов с энергией от 0,85 до 3,37 МэВ, а также  $^{14}\text{C}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ , содержащиеся в элементах конструкции (бетон, сталь) на уровне следов (от  $1,0 \cdot 10^{-2}$  до  $1,0 \cdot 10^{-5}$  массовых %) однако способны излучать  $\beta$ -частицы с энергией до от 0,1 кэВ до 1,1 МэВ в течение нескольких тысяч лет.

#### **Литература.**

1. Шаманин И.В., Буланенко В.И., Беденко С.В. Поле нейтронного излучения облученного керамического ядерного топлива различных типов // Известия вузов. Ядерная энергетика, 2010. - т. - № 2. - с. 97-103.

## **ИЗМЕНЕНИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ ОБЛУЧЕННОЙ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ КОНСТРУКЦИОННОЙ СТАЛИ ПОСЛЕ МЕХАНИЧЕСКИХ ИСПЫТАНИЯХ НА ПОЛЗУЧЕСТЬ И С ПОСТОЯННОЙ СКОРОСТЬЮ ДЕФОРМАЦИИ**

Киреев В.В., Диков А.С., Кислицин С.Б., Нестерова А.Ю.

*Институт ядерной физики Национального ядерного центра РК, г. Алматы, Казахстан*

Анализ микроструктуры и микротвердости до и после испытаний на ползучесть и кратковременных механических испытаний до разрушения облученной в реакторе БН-350 стали 12Х18Н10Т, материалов отработанных топливных сборок. Подготовка образцов для экспериментов.

**Введение.** Исследованы изменения структуры конструкционной нержавеющей стали 12Х18Н10Т – материала чехлов отработанных тепловыделяющих сборок (ТВС) реактора на быстрых нейтронах БН-350 в исходном состоянии (т.е. после эксплуатации в реакторе БН-350), кратковременных механических испытаний с постоянной скоростью деформации при повышенных температурах и после испытаний на ползучесть выполненных при температурах 350 °С и постоянной нагрузке 100 Н.

Структурные изменения исследованы для двух тепловыделяющих сборок ЦЦ-19 и Н-214/1, условия эксплуатации которых существенно различались. ТВС ЦЦ-19 – центральная сборка, Н-214 – ТВС наружного экрана, поэтому доза облучения материала этих сборок и скорость набора дозы различны, в то время как температура эксплуатации, зависящая от температуры теплоносителя одинакова по высоте обеих сборок. Исследовались образцы стали чехлов из верхней части обеих ТВС и нижней части, т.к. температура, доза облучения и скорости облучения для них различались.

**Подготовка образцов и методы исследования.** Для испытаний на ползучесть до разрушения и проведения кратковременных механических испытаний образцов сборки Н-214(1) и ЦЦ-19 в температурно-силовых условиях, имитирующих длительное хранение отработанного топлива, приготовлены микрообразцы (размерами 20 мм × 2 мм × 0,3 мм) необлученной и облученной аустенитной нержавеющей стали 12Х18Н10Т. Облученные нейтронами образцы, изготовлены из чехла отработанной экранной сборки Н-214(1) реактора БН-350 с отметок +900 мм и 0 мм от центра активной зоны и ЦЦ-19 реактора БН-350 с отметок +500 мм и 0 мм. Необлученные образцы изготовлены из чехла неиспользованной топливной сборки.

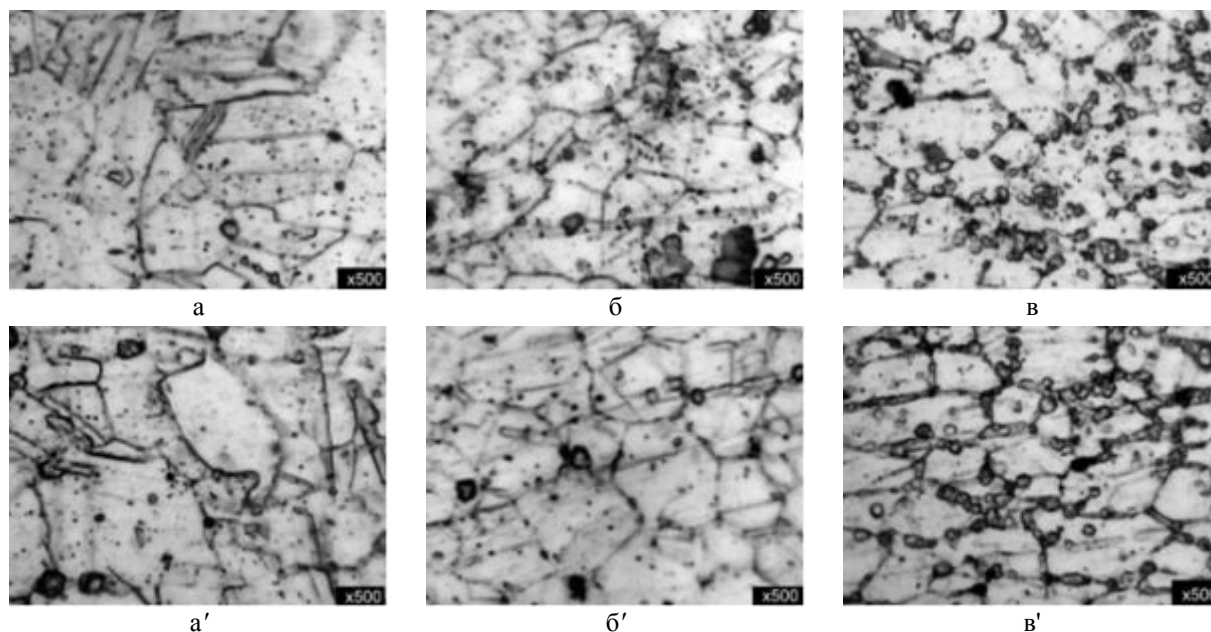
Для исследования микроструктуры использовался оптический немецкий микроскоп Axio Observer D1m. Образцы для микроструктурных исследований после шлифовки протравливались (электротравление) в водном растворе (вода дистиллированная 80%) + 20% ангидрида хромового ( $\text{CrO}_3$ ) при комнатной температуре. Режим травления: ток – 1А, напряжении 5В.

Измерения микротвердости выполнялась на микротвердомере ПТМ-3 с полуавтоматическим микрометром фотоэлектрического окуляра ФОМ-2. Микротвердость измерялась вдоль образцов 3-мя рядами с шагом 1000 × 500 мкм (нагрузка на индентор 140 г, время выдержки 10 с).

**Результаты эксперимента и их обсуждение.** Изменения механических свойств материалов определяются, в конечном счете, изменениями структуры материала. Поэтому наряду с кратковременными механическими испытаниями и испытаниями на ползучесть проводились исследования структуры методами оптической металлографии и измерения микротвердости исследуемых образцов необлученной и облученной стали как до испытаний, так и после. Как известно [1, 3], в чехловой стали 12Х18Н10Т неоднородность структуры по толщине стенки чехла наблюдается уже в исходном (до облучения) состоянии. Причиной этого являются технологические операции на стадии изготовления чехла [3]. Металлографические исследования испытанной при 350°С необлученной стали 12Х18Н10Т после кратковременных механических испытаний, показали заметные изменения её структуры, по сравнению с исходной. Так в испытанной при температуре 350°С необлученной стали 12Х18Н10Т после кратковременных механических испытаний (рисунок 1а – а') в теле зерна отмечено двойникование. Границы аустенитных зерен стали тоньше, чем в недеформированном образце, появились цепочки карбидов на границах аустенитных зерен. В области разрушения зерна вытянутые. Размеры зерен практически не изменились по сравнению с недеформированным материалом (см. таблицу 1).

Структура деформированной при температуре 350°С облученной стали с нижней отметки (ТВС Н-214(1) отметка 0 мм, температура облучения ~337°С, повреждающая доза ~15 сна) имеет свои особенности (рисунок 1б – б'). Присутствует большое количество дисперсных карбидов, расположенных по границам зерен, в то время как количество карбидов в теле зерна уменьшилось. Средний размер карбидов – 1...2 мкм. Границы зерен тонкие. В результате испытаний - одноосного растяжения при 350°С - морфология и размеры включений вторичных фаз, в частности дисперсных карбидов, практически не изменились по сравнению с недеформированным облученным материалом.

На металлографическом снимке (рисунок 1в – в') испытанной при температуре 350°С стали 12Х18Н10Т с верхней отметки ТВС Н-214(1) помимо мелких карбидов и растянутых зерен в области разрыва обращают на себя внимание группы коагулированных карбидов, расположенных по границам зерен. Средний размер карбидов – 2...4 мкм. Коагуляция карбидов и их скопление преимущественно на стыках границ трех зерен. следствие высокотемпературного низкодозного облучения (температура облучения ~400°С, повреждающая доза ~2 – 3 сна). При этом по расположению карбидов можно судить о границах зерен. Размер коагулированных карбидов равен 5...8 мкм.



*а) – необлученный (область захвата), а') – необлученный (область разрыва),  
 б) ТВС Н-214/1, отметка «0», область захвата, б') ТВС Н-214/1, отметка «0», область разрыва,  
 в) ТВС Н-214/, отметка «+900, область захвата, в') ТВС Н-214/, отметка «+900, область разрыва.*

Рисунок 1 – Микроструктура облученной и необлученной стали 12Х18Н10Т после механических испытаний на одноосное растяжение при температуре 350°С

Кратковременные механические испытания при температуре 350°С. вызвали неравномерный рост кристаллитов аустенита. В результате одни зерна выросли до размера ~100 мкм, другие остались неизменными со средним диаметром ~15 ÷ 30 мкм (таблица 1).

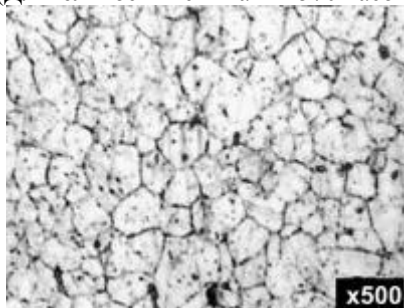
Обращает на себя внимание следующее важное обстоятельство: структура облученной стали с отметки «0» после кратковременных механических испытаний (рисунки 1а,а') и испытаний на ползучесть (рисунки 4а,а') практически одинакова. Она имеет хорошо развитую двойниковую структуру (рисунок 4а). В теле и на границах зерен присутствуют дисперсные карбиды. Средний размер карбидов – 1...2 мкм. Границы зерен после длительных испытаний (570 часов) изменились незначительно по сравнению с границами зерен до испытаний.

Таблица 1 – Размер зерна (мин - макс) облученной и необлученной стали 12X18H10T

Образцы	D до испытаний, мкм	D после испытаний, мкм			
		После механических испытаний на одноосное растяжение ( $t_{исп}=350^{\circ}\text{C}$ )		После испытаний на ползучесть ( $t_{исп}=350^{\circ}\text{C}$ , $P=100\text{ Н}$ )	
		в области разрушения	в области захватов	в области разрушения	в области захватов
Необлученный	30 - 98	29 – 102	28 – 69	30 – 100	30 – 70
ТВС ЦЦ-19, отметка 0 мм	22 - 51	Не проводились		12 - 50	20 - 80
ТВС ЦЦ-19, отметка +500 мм	20 - 50	Не проводились		13 - 54	18 - 83
ТВС Н-214(1), отметка +0 мм	23 - 46	15 – 70	15 – 60	20 - 65	20 - 61
ТВС Н-214(1), отметка +900 мм	16 - 53	20 – 60	15 - 50	22 - 55	19 - 48

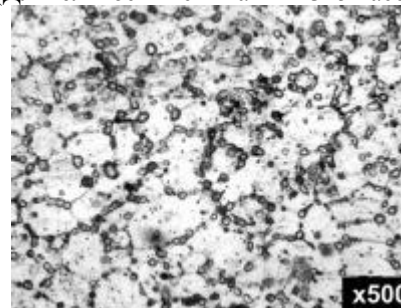
В тоже время, испытания на ползучесть (1325 часов) привели к заметному изменению микроструктуры облученной стали 12X18H10T с отметки «+900» мм. Зерна аустенита вытянулись вдоль направления растягивающей нагрузки и, наряду с цепочками черных точек – мелкими выделениями карбидов в теле зерна, наблюдаются более крупные выделения карбидов на границах и, особенно, в области тройных стыков границ зерен аустенита (рисунок 4б'). При этом тело зерен аустенита в значительной степени очистилось от выделений. Границы зерен значительно уширились и хорошо протравлены. Средний размер коагулированных карбидов уменьшился до 2...4 мкм по сравнению с их размерами до испытаний на ползучесть.

ТВС Н-214(1), отметка «0»  
(Длительность испытания 570 часов)

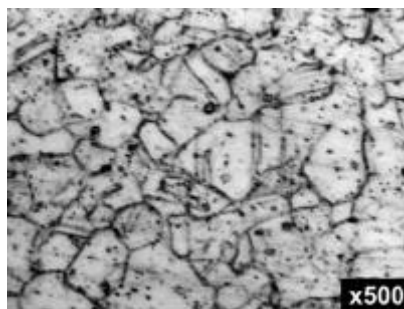


a

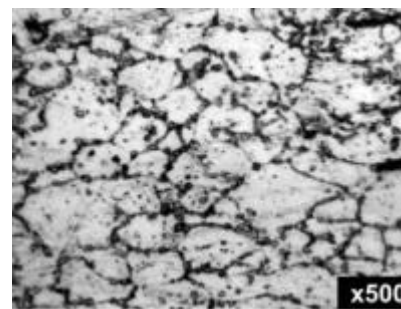
ТВС Н-214(1), отметка «+900»  
(Длительность испытания 1325 часов)



б



a'



б'

а) ТВС Н-214/1, отметка «0», область разрыва (570 ч),  
б) ТВС Н-214/, отметка «+900», область разрыва (1350 ч).

Рисунок 4 – Микроструктура облученной стали 12X18H10T после длительных испытаний на ползучесть при нагрузке 100 Н и температуре 350<sup>0</sup>С

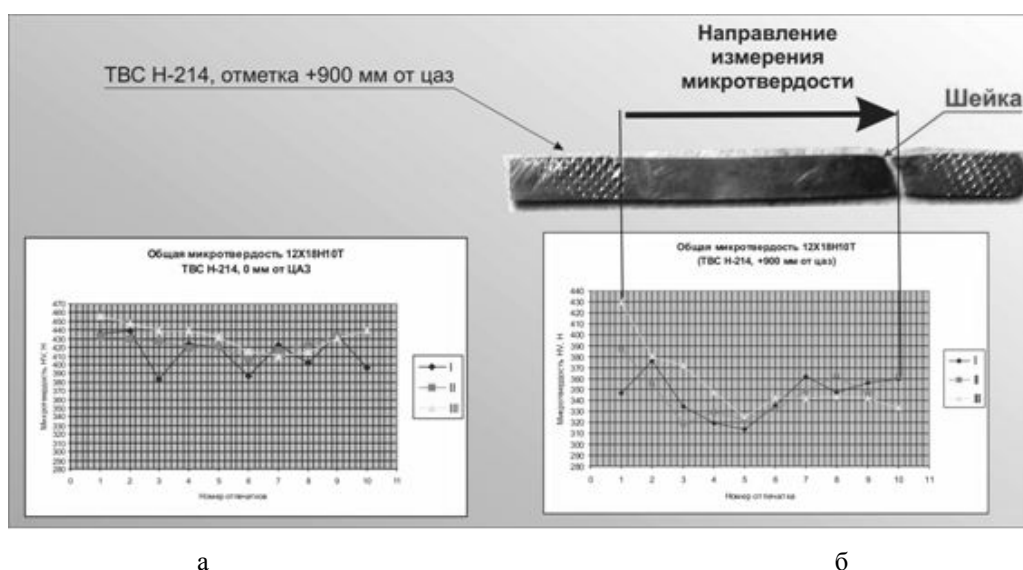
Анализ результатов измерения микротвердости стали 12X18H10T деформированной после кратковременных механических испытаний, при температуре 350<sup>0</sup>С показал (таблица 3), что более значительное увеличение микротвердости аустенитной стали проявляется для участков чехла ТВС в диапазоне низкотемпературного облучения (отметка 0 мм, температура облучения ~337<sup>0</sup>С, повреждающая доза ~15 сна) [2]. Воздействие низкотемпературного облучения на свойства металла связано преимущественно с образованием скоплений точечных дефектов и стимулированным облучением образованием мартенситной фазы. Кратковременные механические испытания при температуре 350<sup>0</sup>С вызывают практически одинаковое в процентном отношении (6 – 8%) упрочнение как необлученного, так и облученного материала. Это свидетельствует о том, что механизмы упрочнения при кратковременных механических испытаниях одинаковы для облученной и необлученной стали.



Таблица 3 – Микротвердость, облученной и необлученной стали 12X18H10T

Образцы	Н <sub>μ</sub> , кг/мм <sup>2</sup>		
	до испытаний кг/мм <sup>2</sup>	после испытаний	
		на одноосное растяжение (t <sub>исп</sub> = 350 <sup>0</sup> С)	на ползучесть (t <sub>исп</sub> =350 <sup>0</sup> С, P=100 Н)
Необлученный	280	321	306
ТВС ЦЦ-19, отметка 0 мм	285	Не проводились	281
ТВС ЦЦ-19, отметка +500 мм	342	Не проводились	365
ТВС Н-214(1), отметка 0 мм от цаз	428	457	444
ТВС Н-214(1), отметка +900 мм от цаз	340	363	351

Отмечено, что на облученных испытанных образцах значения микротвердости по ширине образцов неоднородно: в крайних рядах (внутренней, обращенной к тепловыделяющим элементам и внешней поверхностях чехлов ТВС) значения микротвердости по длине образца имеют близкие значения, а в среднем ряду значительно выше, примерно на 14,5%.



а – отметка «0» от центра активной зоны, б – отметка «+900» от центра активной зоны  
Рисунок 2 – Микротвердость по длине образцов облученной стали 12X18H10T после длительных испытаний на ползучесть при нагрузке 100 Н и температуре 350<sup>0</sup>С

Необходимо подчеркнуть, что для всех исследованных образцов закономерность изменения микротвердости вдоль образцов примерно одинаковая: наибольшие значения Н<sub>μ</sub> в области захвата, небольшое уменьшение по центру рабочей зоны и увеличение в области разрушения образца. Сравнительный анализ результатов измерения микротвердости необлученной и облученной стали 12X18H10T до и после испытаний на ползучесть при нагрузке 100 Н и температуре 350<sup>0</sup>С показал (таблица 5, рисунок 3), что небольшое увеличение величины микротвердости наблюдается для необлученной стали и облученной в низкотемпературном диапазоне (отметка 0 мм, температура облучения ~337<sup>0</sup>С, повреждающая доза ~15 сна) [2]. В тоже время в стали облученной при более высокой температуре, но до меньшей повреждающей дозы (отметка +900 мм от цаз, температура облучения ~400<sup>0</sup>С, повреждающая доза ~2 – 3 сна) величина микротвердости после испытаний незначительно уменьшается.

Таблица 5 –Среднее значение микротвердости в рабочей части образца до и после длительных испытаний на ползучесть при нагрузке 100 Н и температуре 350<sup>0</sup>С

Образцы	Н <sub>μ</sub> до испытаний, кг/мм <sup>2</sup>	Н <sub>μ</sub> после длительных испытаний, кг/мм <sup>2</sup>
Необлученный (120 ч.)	280	287
ТВС Н-214(1), отметка 0 мм от цаз (570 ч.)	428	421
ТВС Н-214(1), отметка +900 мм от цаз (1325ч.)	340	347

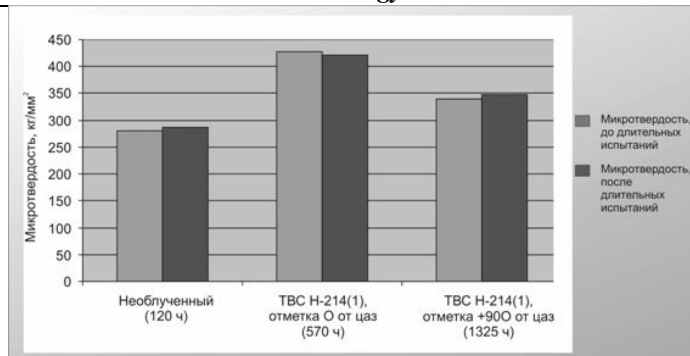


Рисунок 3 – Изменение микроструктуры облученной стали 12X18H10T после длительных испытаний на ползучесть при нагрузке 100 Н и температуре 350<sup>0</sup>С

#### Выводы:

1. В результате проведенных исследований установлено, что исходная структура – образцы стали после облучения – характеризуется приблизительно равным количеством крупных и мелких зерен, мелкие зерна имеют размер ~ 15-20 мкм, большие ~ 50-60 мкм. Также присутствует двойники и карбиды на границах зерен. Микротвердость  $H_c$  составляет от 340 до 430 кгмм<sup>-2</sup>, для образцов из различных сборок и взятых с различных отметок по отношению к центру активной зоны (цаз). Наибольшее значение микротвердости для образцов ТВС ЦЦ-19 и Н-214/1 с отметки 0 мм от цаз (430 кгмм<sup>-2</sup> для стали чехла ТВС Н-214/1), т.е. в области меньшей температуры облучения. Заметим, что облученная сталь чехлов ТВС упрочнена – значение микротвердости для необлученной чехловой стали составляет ~ 280 кгмм<sup>-2</sup>.

2. Микроструктура нержавеющей стали 12X18H10T после кратковременных механических испытаний ТВС Н-214(1) с отметки +900 мм и 0 мм от цаз существенно различна. Для стали с с отметки +900 мм структура неоднородная, четкой границы зерен не наблюдается, зерна имеют размер от 15-20 мкм до 65-70 мкм. Для стали с отметки 0 мм характерна более однородная микроструктура, четко просматриваются границы зерен, отсутствует двойникование, зерна имеют размеры от 15-20 мкм до 55-60 мкм. Микротвердость по длине испытанных образцов неоднородна, наибольшее увеличение микротвердости на ~ 20% в области прилегающей к месту разрушения.

3. Микроструктура нержавеющей стали 12X18H10T сборок Н-214/1 с отметки +900 мм от центра активной зоны (цаз) и ЦЦ-19 +500 мм от цаз после испытаний на ползучесть в течение 120 ч (выход на установившуюся стадию ползучести без разрушения) мало отличается от структуры исходной облученной стали. Микротвердость испытанных на ползучесть образцов облученной стали также возросла незначительно, на ~ 3-5%.

#### СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ:

1. Максимкин О.П., Тиванова О.В. Влияние нейтронного облучения на температурно-скоростные изменения характеристик прочности и пластичности сплава 03X20H45M4БРЦ и стали 12X18H10T. // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиац. поврежд. и радиац. материаловед. – 2003. – №3. – С.35-43.
2. Паршин А.М., Петкова А.П. Низкотемпературное радиационное охрупчивание и вырождение деформационной способности аустенитных сталей и сплавов // Металлы. – 2001. – № 3. –С.123-127.
3. О.П. Максимкин, О.В. Тиванова, Л.Г. Турубарова. Различия структуры и свойств поверхностей шестигранного чехла отработавших ТВС реактора БН-350//Вопросы атомной науки и техники. 2007. № 2. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (90), с. 142-149.
4. Деформация и разрушение при термических и механических воздействиях. Выпуск III. // АТОМИЗДАТ Москва – 1969.

### ИСПЫТАНИЯ НА ДЛИТЕЛЬНУЮ ПРОЧНОСТЬ КОНСТРУКЦИОННОЙ СТАЛИ 12X18H10T, ОБЛУЧЕННОЙ В РЕАКТОРЕ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ БН – 350

Диков А.С., Киреев В.В., Горцев А.П., Кислицин С.Б., Нестерова А.Ю.  
Институт ядерной физики Национального ядерного центра РК, г. Алматы, Казахстан

*Изучены закономерности изменения скорости ползучести при испытаниях на длительную прочность образцов стали 12X18H10T, необлученных и облученных нейтронами на реакторе БН-350 (доза облучения 3 и 15 сна) в температурно-силовых условиях характерных для сухого хранения отработанного топлива. Установлено, что скорость ползучести облученной стали неодинакова по высоте чехла отработанной топливной сборки.*

#### ВВЕДЕНИЕ

Обеспечение безопасного обращения с отработанным ядерным топливом при таких операциях как длительное хранение, транспортировка, перегрузка в значительной мере зависит от состояния материалов оболочек ядерного топлива. Оболочки тепловыделяющих элементов (ТВЭЛ) и чехлы тепловыделяющих сборок (ТВС) удерживают

невыгоревшее ядерное топливо и радиоактивные элементы, образовавшиеся в процессе эксплуатации. Разрушение или нарушения целостности оболочек топлива повышают риски распространения радиоактивных элементов. Конструкционные материалы оболочек должны обеспечивать не только их работоспособность в период эксплуатации, но также и удержание продуктов деления топлива во время длительного хранения отработавших ТВС. Наиболее важными процессами, негативно влияющими на свойства материалов оболочек отработанного топлива во время длительного хранения, являются коррозия и деградация прочностных свойств, т.е. «старение» материала оболочки, усугубленные предысторией – т.е. облучением в реакторе за период эксплуатации. Знание степени деградации физико-механических свойств материалов оболочек топлива позволяет прогнозировать сроки безопасного хранения и применять различные способы обращения с отработанным топливом.

В работе обсуждаются результаты механических испытаний облученной стали 12X18H10T – материала чехлов отработанных ТВС первого поколения реактора БН-350. Кратковременные механические испытания и испытания на ползучесть проводились в температурно-силовых условиях, имитирующих длительное хранение отработанной ТВС.

#### **ПОДГОТОВКА ОБРАЗЦОВ И МЕТОДИКИ ПРОВЕДЕНИЯ ИСПЫТАНИЙ**

В качестве объектов исследования использовалась аустенитная нержавеющая сталь 12X18H10T – материал чехла отработанной ТВС Н-214(1) реактора БН-350. Для кратковременных механических испытаний и испытаний на ползучесть до разрушения были приготовлены микрообразцы (размерами 20 мм × 2 мм × 0,3 мм) необлученной и облученной аустенитной нержавеющей стали 12X18H10T. Облученные нейтронами образцы (Таблица 1), изготовлены из чехла отработанной экранной сборки Н-214(1) реактора БН-350 с отметок +900 мм и 0 мм от центра активной зоны (ц.а.з.). Необлученные образцы изготовлены из чехла неиспользованной топливной сборки.

Таблица 1 – Условия облучения образцов конструкционной стали 12X18H10T ТВС Н-214(1)

Характеристики облучения	Отметка 0 мм от ц.а.з	Отметка +900 мм от ц.а.з
Доза облучения, сна	~ 15	~ 2-3
Скорость набора дозы, сна/с	~ 4·10 <sup>-8</sup>	~ 0,5·10 <sup>-8</sup>
Т облучения, °С	~ 337	~ 400

Кратковременные и длительные механические испытания проводились при температуре 350<sup>0</sup>С после выдержки их без нагрузки в течение часа (время выхода на устойчивую заданную температуру) при этой же температуре на универсальной испытательной машине LR5K Plus. Результаты регистрировались в процессе работы с помощью программного обеспечения NEXYGEN Plus.

Кратковременные механические испытания образцов (одноосное растяжение) проводились со скоростью деформации 0,5 мм/мин.

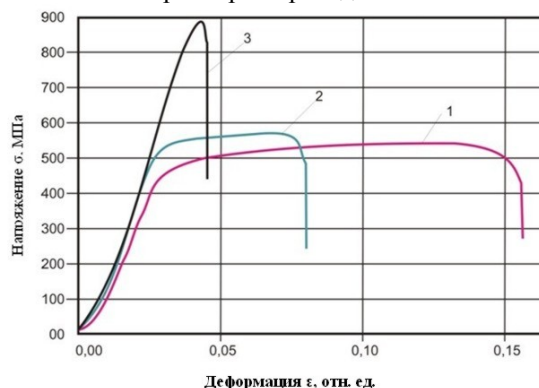
Испытания на длительную прочность проводились на необлученном и на 2-х облученных микрообразцах аустенитной нержавеющей стали 12X18H10T в температурно-силовых условиях, имитирующих длительное хранение отработанного топлива: растягивающая нагрузка 100 Н, температура испытания 350<sup>0</sup>С. Нагрев образца без нагрузки до температуры испытания (350<sup>0</sup>С) – 1 час. Выход на рабочую нагрузку (100 Н) со скоростью нагружения 0,5 мм/мин - 10÷15 сек.

#### **РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТОВ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ**

##### *Кратковременные механические испытания (одноосное растяжение)*

С целью установления эмпирической корреляции между длительной прочностью и механическими характеристиками, в преддверии испытаний на длительную прочность конструкционной стали 12X18H10, были проведены кратковременные механические испытания при температуре 350<sup>0</sup>С необлученного и облученных (экранный сборки Н-214(1) с отметок 0 и +900 мм от центра активной зоны) микрообразцов. Кроме того, по результатам кратковременных испытаний была выбрана растягивающая нагрузка для длительных испытаний (меньше полны напряжения на условном пределе текучести).

В процессе растяжения регистрировалась инженерная диаграмма растяжения, «напряжение  $\sigma$  – деформация  $\epsilon$ » (рисунок 1) и были получены расчетные значения параметров проведенных испытаний (таблица 2).



1 – необлученный образец; 2 – ТВС Н-214(1), отметка +900; 3 – ТВС Н-214(1), отметка 0 мм от ц.а.з.

Рисунок 1 – Диаграммы деформации необлученного и облученных нейтронами образцов конструкционной стали 12X18H10T при температуре 350<sup>0</sup>С

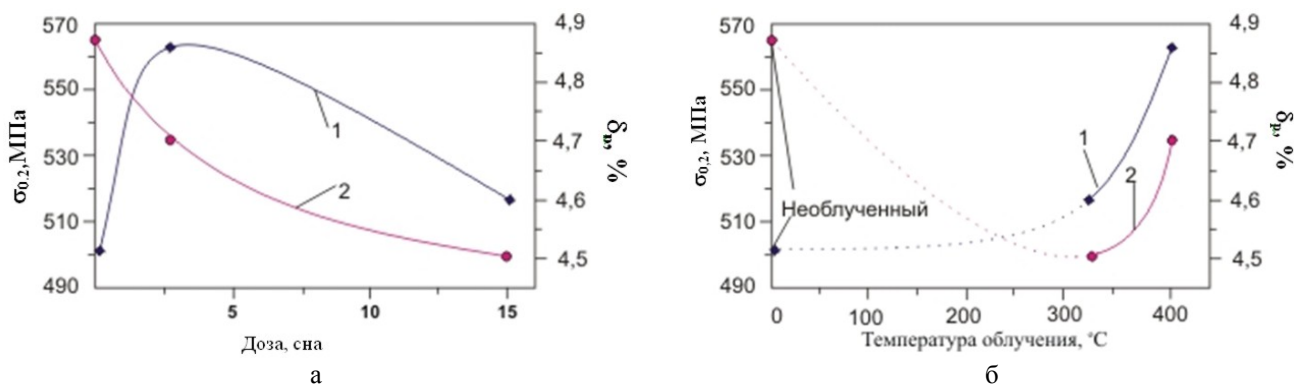
Как видно из рисунка 1 и таблицы 2, значение  $\sigma_B$  после облучения до повреждающей дозы 15 сна резко повышается, но также резко снижается пластичность стали. Анализ экспериментальных данных показывает, что с увеличением дозы облучения, кроме потери пластичности, вырождается и сосредоточенная деформация, что свидетельствует об интенсификации повреждаемости в шейке в облученных материалах [1]. Образец необлученной стали имеет наибольшую пластичность ~ 16 %, для дозы облучения ~ 3 сна пластичность уменьшилась до ~ 8 % (отметка +900 мм) и по мере увеличения дозы облучения ~ 15 сна (отметка 0 мм) пластичность наименьшая ~ 4,5 %.

Таблица 2 – Результаты кратковременных механических испытаний на растяжение при температуре 350<sup>0</sup>С необлученного и облученных нейтронами образцов конструкционной стали 12Х18Н10Т

Физические характеристики	Необлученный образец	Н-214/1, отметка +900 мм от цаз	Н-214/1, отметка 0 мм от цаз
Жесткость (N/m)	1443209,56	1603434,19	1784600,93
Модуль Юнга (МПа)	21866,81	27645,42	27039,41
Напряжение при максимальном удлинении (МПа)	267,66	236,02	855,16
Относительная деформация при максимальном удлинении, %	15,66	7,97	4,53
Предел прочности при растяжении (МПа)	545,25	576,64	886,17
Удлинение при разрушении (mm)	1,57	0,80	0,45
Напряжение на условном пределе текучести (МПа)	501,73	562,85	517,02
Относительная деформация на условном пределе текучести, %	4,86	4,69	4,50

Как показано в литературе [2], с ростом температуры испытания наблюдается непрерывное уменьшение степени упрочнения необлученного и облученного материалов, и выше 350<sup>0</sup>С их значения практически совпадают. Полученные нами данные подтверждают эту закономерность – значения как напряжения так и относительной деформации на условном пределе текучести для необлученной стали 12Х18Н10Т и облученной до небольших повреждающих доз (не более 15 сна) имеют близкие значения, так напряжение на условном пределе текучести ( $\sigma_{0,2}$ ) меняется в пределах 502 ÷ 563 МПа, а относительная деформация на условном пределе текучести ( $\delta_p$ ) – в пределах 4,87 ÷ 4,50% (рисунок 2а,б). В то время как для этой же стали облученной до повреждающей дозы ~15 сна (отметка 0 мм) выполненные ранее исследования прочностных характеристик при комнатной температуре показали следующие результаты:  $\sigma_{0,2} = 970$  МПа,  $\sigma_B = 1100$  МПа [3]. Т.е. значения прочностных характеристик, полученные в ходе испытаний при комнатной температуре и при 350<sup>0</sup>С, отличаются значительно.

Закономерности изменения свойств исследуемого материала при одноосном растяжении обобщены на рисунках 2а,б в виде дозовых и температурных зависимостей характеристик прочности и пластичности. Видно, что наибольший предел текучести у материала чехловой стали при дозе облучения ~3 сна (отметка +900 мм), что указывает на значительный вклад температуры облучения (~ 400<sup>0</sup>С) в изменение физико-механических характеристик исследуемого материала.



1 – напряжение на условном пределе текучести ( $\sigma_{0,2}$ ), 2 – относительная деформация на условном пределе текучести ( $\delta_p$ ).

Рисунок 2 – Влияние повреждающей дозы (а) и температуры облучения (б) на характеристики прочности и пластичности конструкционной стали 12Х18Н10Т (по данным, полученным при одноосном растяжении необлученного и облученных образцах ТВС Н-214 (I) при температуре 350<sup>0</sup>С)

### Испытания на ползучесть

Испытания на ползучесть образцов стали 12Х18Н10Т – материала чехлов отработанной ТВС Н-214(1) проводились с целью определения скорости ползучести и максимально достижимой деформации в температурно-силовых условиях имитирующих длительное хранение отработанного топлива. В ходе проводимых испытаний исследуется совместное влияние длительного приложения нагрузки (100 Н) и повышенной температуры (350<sup>0</sup>С) на

деформацию материалов при напряжениях, не превышающих предела текучести, определенного нами во время описанных выше кратковременных механических испытаний при той же температуре 350<sup>0</sup>С.

Облученные нейтронами образцы изготовлены из чехла отработанной экранной сборки Н-214(1) реактора БН-350 с отметок +900 и 0 мм от центра активной зоны. Характеристики облучения образцов конструкционной стали 12Х18Н10Т ТВС Н-214(1) приведены выше в таблице 1.

Длительность испытаний на ползучесть необлученного образца 120 часов, облученного с отметки «0» – 571 час. Эти два образца не были разрушены и образование шейки на них не зафиксировано. Образец с отметки «+900» разрушился в ходе испытаний на ползучесть по истечении 1325 часов. На образце явно видна шейка (рисунок 4), сужение шейки относительно ширины образца составляет ~7,5%.

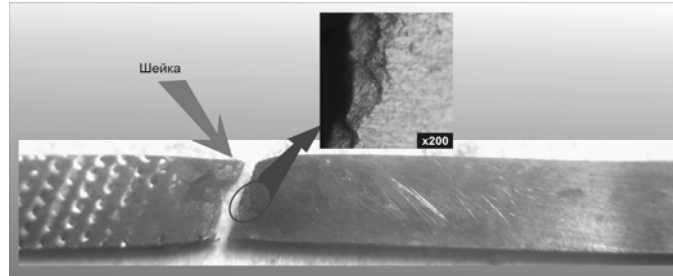
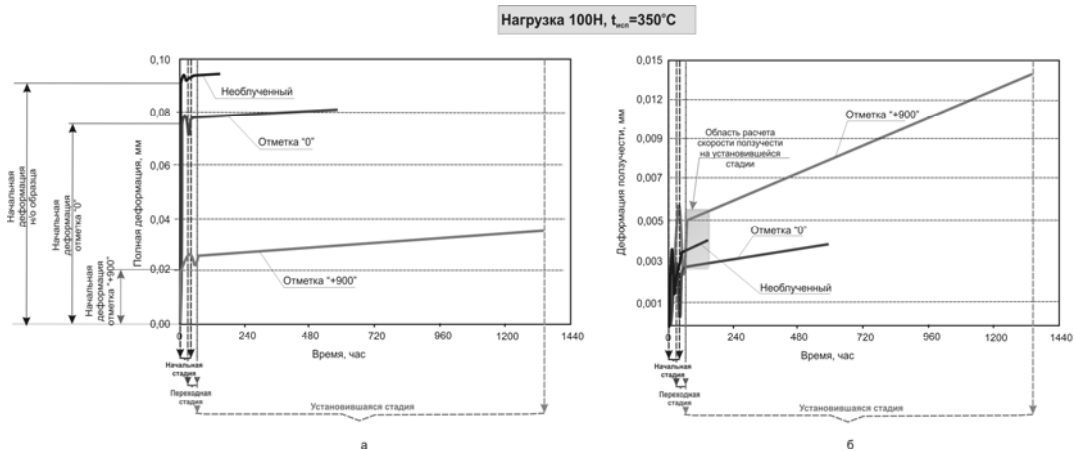


Рисунок 4 – Образец ТВС Н214(1) с отметки «+900» после испытаний на ползучесть

Диаграммы испытаний на ползучесть необлученного и облученных образцов стали приведены на рисунке 5 а,б. Процесс деформации можно разделить на три стадии – начальную, переходную и установившуюся. На переходной стадии наблюдается характерный локальный минимум деформации. На графиках, представленных на рисунке 5а,б в начальный период испытаний наблюдается отрицательная ползучесть, т.е. уменьшение длины образца. Через ~ 24 часа кривая принимает обычный вид. Подробно результаты испытаний на начальной стадии ползучести изложены в работе [4]. Суммарная длительность начальной и переходной стадий для каждого из образцов составляют приблизительно 24 часа. Деформация ползучести на установившейся стадии  $\epsilon_{пуч}$  определялась нами как разница полной деформации  $\epsilon$ , начальной деформации  $\epsilon_0$  (деформация преднагрузки, т.е. выход на нагрузку испытаний) и деформации полученной материалом на начальной и переходной стадиях  $\epsilon_{нп}$ , т.е.  $\epsilon_{пуч} = \epsilon - \epsilon_0 - \epsilon_{нп}$  (рисунок 5а,б; таблица 5).



*а – полная деформация ( $\epsilon$ ); б – деформация ползучести ( $\epsilon_{пч}$ ).*

Рисунок 5 – Диаграмма испытаний облученной (ТВС Н-214(1), отметки «0» и «+900» мм от центра активной зоны) и необлученной стали 12Х18Н10Т

Несмотря на то, что время выхода на заданную нагрузку (100 Н) пренебрежимо мало ~ 10 – 15 сек по сравнению со временем проведения эксперимента 570 – 1325 часов, начальная деформация  $\epsilon_0$  вносит большой вклад в полную деформацию материала.

Поскольку скорость ползучести определяется производной деформации по времени, то для участка, соответствующего установившейся стадии, она равна тангенсу угла наклона к оси абсцисс. Следовательно, большая величина угла наклона линейных участков к оси абсцисс говорит о большей по величине скорости ползучести.

На основе проведенных исследований можно сделать следующие выводы: скорость ползучести неодинакова по высоте чехла топливной сборки  $\epsilon'$  (центр ТВС) = 4,88·10<sup>-8</sup> мм/мин,  $\epsilon'$  (верх ТВС) = 1,1·10<sup>-07</sup> мм/мин (таблица 5, рисунок 6б).

В связи с этим, с течением времени хранения чехол отработанной ТВС будет деформироваться неравномерно по высоте, причем верхняя часть чехла будет деформироваться в большей степени, по сравнению с нижней частью. Это приведет к изменению формы чехла и появлению дополнительных механических напряжений в его материале, а, следовательно, и к увеличению скорости деформации ползучести. Заметим, что скорость ползучести на

установившейся стадии низкооблученного (~2÷3 сна) при высокой температуре (400<sup>0</sup>С) материала 12Х18Н10Т (отметка «+900») выше примерно на 19%, скорости ползучести необлученного материала. В то же время скорость ползучести облученного материал на отметке «0» на ~18% ниже, чем у необлученной стали (рисунок 6).

Таблица 5 – Деформация и скорость ползучести облученной и необлученной стали 12Х18Н10Т на установившейся стадии ползучести (нагрузка 100Н, температура 350<sup>0</sup>С)

Характеристики ползучести	ТВС Н-214(1)		Необлученная ТВС Длительность испытания 120 часов
	Отметка «+900» мм от цаз. Длительность испытания 1325 часов	Отметка «0» мм от цаз. Длительность испытания 570 часов	
Полная деформация (ε), мм	0,0330	0,0810	0,0950
Начальная деформация (ε <sub>0</sub> ), мм	0,0190	0,0766	0,0910
Суммарная деформация начальной и переходной стадий (ε <sub>шт</sub> ), мм	0,0050	0,0028	0,0035
Деформация ползучести на установившейся стадии (ε <sub>пвс</sub> ), мм	0,0090	0,0016	0,0050
Относительная деформация ползучести на установившейся стадии, %	0,9	0,16	0,05
Скорость ползучести на установившейся стадии (ε'), мм/мин	1,1·10 <sup>-7</sup>	4,9·10 <sup>-8</sup>	8,68·10 <sup>-8</sup>

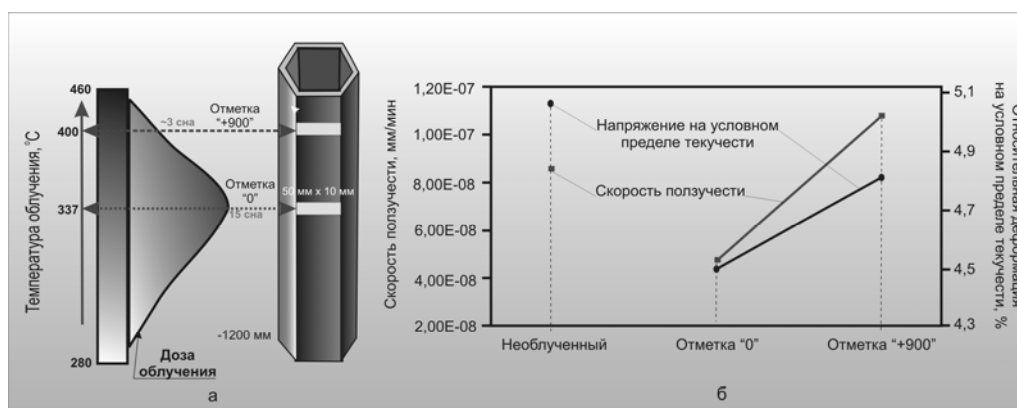


Рисунок 6 – Параметры облучения отработанной тепловыделяющей экранной сборки Н-214(1) (а); изменения скорости ползучести на установившейся стадии и напряжения на условном пределе текучести вдоль чехла облученной экранной сборки Н-214(1) и в необлученной стали 12Х18Н10Т (б)

Нельзя оставить без внимания тот важный факт, что изменения значений скорости ползучести (см. таблицу 5) для образцов с разных участков чехла ТВС коррелируют (рисунок 6) с изменениями величин относительной деформация на условном пределе текучести облученного и необлученного материала 12Х18Н10Т, полученными при кратковременных механических испытаниях на растяжение при температуре 350<sup>0</sup>С (см. таблицу 2).

Для надежного прогнозирования поведения стальных оболочек (чехлов ТВС, оболочек ТВЭЛ) отработанного ядерного топлива (ОЯТ) при длительном хранении требуется проведение дополнительных исследований, в том числе по выявлению зависимости скорости ползучести облученной стали от температуры испытаний, величины нагрузки, предварительной набранной дозы и температуры облучения.

#### Выводы

- Испытания на ползучесть стали 12Х18Н10Т – материала чехла отработанной ТВС Н-214/1 реактора БН-350, выполненные в условиях имитирующих длительное «сухое» хранение отработанного ядерного топлива показали, что скорости ползучести стали с разных участков чехла по его высоте существенно различаются. Скорость ползучести стали из верхней части сборки (1,1·10<sup>-7</sup> мм/мин), облученной при температуре ≥400<sup>0</sup>С более чем в 2 раза выше скорости ползучести стали из нижней части сборки (4,9·10<sup>-8</sup> мм/мин), облученной при температуре ~300<sup>0</sup>С.
- Различие в скорости ползучести стали по высоте ТВС приведет к разной степени деформации различных участков сборки по высоте, что в свою очередь скажется в появлении дополнительных напряжений в стали и увеличении скорости ползучести стали со временем хранения.
- Значения скорости ползучести для образцов с разных участков чехла ТВС коррелируют со значениями относительной деформация на условном пределе текучести облученного и необлученного материала 12Х18Н10Т,

полученными при кратковременных механических испытаний на растяжение при температуре 350<sup>0</sup>С на образцах с этих же участков ТВС.

**СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ:**

1. Колосов И.Е., Паршин А.М., Петкова А.П. О пластичности металлов и сплавов. // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиац. поврежд. и радиац. материаловед. – 2002. – №3. – С.71-73.
2. Максимкин О.П., Тиванова О.В. Влияние нейтронного облучения на температурно-скоростные изменения характеристик прочности и пластичности сплава 03X20H45M4БРЦ и стали 12Х18Н10Т. // Вопросы атомной науки и техники. Сер.: Физика радиац. поврежд. и радиац. материаловед. – 2003. – №3. – С.35-43.
3. Kadyrzhanov K.K., Kislitsin S.B., Maksimkin O.P., Romanenko O.G. and Turkebaev T.E. Degradation in Mechanical Properties of Stainless steels C0.12Cr18Ni10Ti and C0.08Cr16Ni11Mo3 – materials for hexagonal Ducts of Spent fuel assemblies from the BN-350 Fast Neutron Reactor. // Material of “Safety Related Issues of Spent Nuclear Fuel Storage”. NATO sciences Series. – 2007. – P.329-349.
4. Диков А.С., Киреев В.В., Кислицин С.Б., Нестерова А.Ю. Испытания на длительную прочность облученной и необлученной стали 12Х18Н10Т. Материалы XI Международной конференции «Физика твердого тела», 2010, Усть-Каменогорск, С. 595 - 600.

**ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ГАЗОФАЗНОГО ОСАЖДЕНИЯ АЛМАЗНЫХ ПЛЕНОК НА ПОВЕРХНОСТЬ ЯДЕРНОЙ КЕРАМИКИ**

А.В. Гайдайчук, С.А. Линник

*Национальный исследовательский Томский Политехнический Университет, г. Томск, Россия.*

Приведены результаты экспериментов по осаждению поликристаллических алмазных пленок на подложки из Si, Ti, Mo с использованием специально разработанной разрядной системы на тлеющем разряде переменного тока. Спомощью атомно-силовой микроскопии и рентгенофазового анализа определены фазовый состав и морфология полученных пленок. Установлено, что полученные алмазные пленки имеют высокую чистоту и кристалличность. Отсутствуют включения не алмазной фазы углерода. Скорость роста алмазной пленки - 6÷7 мкм/ч.

Основное количество работ связанных с разработкой топлива для высокотемпературных газоохлаждаемых реакторов связано с TRISO топливом, разработанным еще в 80-х годах (Рис. 1).

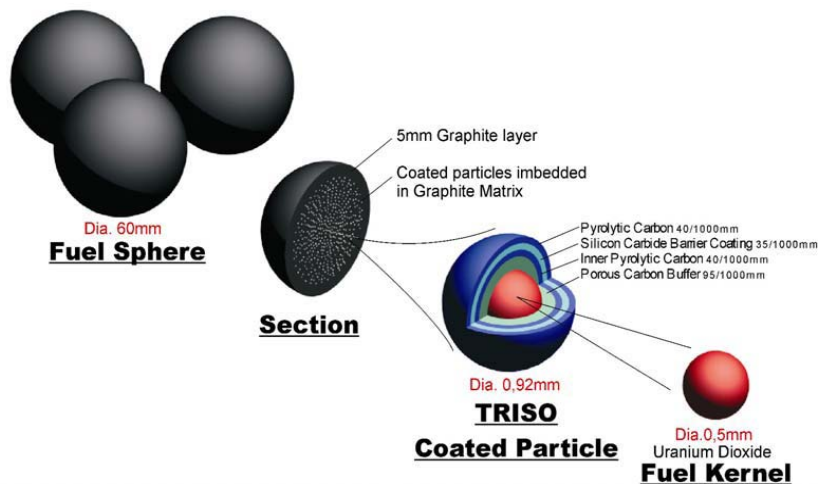


Рисунок 1 – TRISO топливо

Основными материалами, используемыми в данном виде топлива, являются композиты на основе пиролитического углерода (PyC) и карбида кремния (SiC). Выбор данных материалов обусловлен их высокой стойкостью в условиях действия мощных нейтронных потоков, а также способностью выдерживать высокие термомеханические нагрузки. Так же, существует ряд работ посвященных BISO топливу, состоящему из ядерного зерна и двух керамических (TiC, TiN, ZrC, SiC) защитных слоев. Основное отличие BISO от TRISO топлива заключается в использовании в качестве ядерного зерна карбида или оксида урана. Одним из перспективных материалов защитных покрытий керамического ядерного топлива является алмаз. Это связано с его уникальными свойствами: высочайшая твердость и теплопроводность, высокая радиационная стойкость.

Из большинства патентов и литературных источников следует, что основным методом формирования SiC/PyC композитов, является CVD метод с реализацией технологии «псевдооживленного слоя» (Chemical Vapor Deposition – химический метод осаждения из газовой и/или паровой фазы), требующий нагрева реакционного газа (CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>2</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, CH<sub>3</sub>SiCl<sub>3</sub>) до высоких температур ~ 1500 ÷ 2000<sup>0</sup>С [4-10].



Для исследования возможности осаждения поликристаллических алмазных пленок на поверхность ядерной керамики, авторами была разработана разрядная система на сильноточном тлеющем разряде переменного тока. Схема экспериментальной установки приведена на рис. 2.

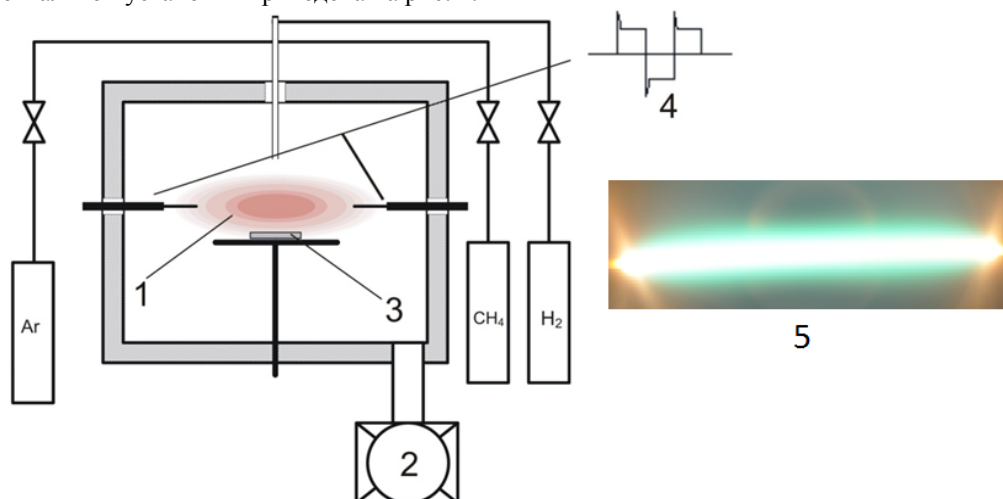


Рис. 2. Схема экспериментальной установки: 1 – плазма, 2 – форвакуумный насос, 3 – подложка, 4 – форма напряжения между электродами, 5 – фотография разряда.

Рабочий газ, представляющий собой смесь Ar, H<sub>2</sub> и CH<sub>4</sub>, подавалась в реактор. Далее путем прикладывания переменного напряжения между парой электродов из тугоплавкого металла (вольфрам, тантал, молибден), зажигался сильноточный тлеющий разряд. Частота импульсов составляла 100 кГц. Мощность разряда варьировалась от 1,8 до 3 кВт. Рабочее напряжение – от 160 до 300 В. Ток – от 5 до 10 А. Рабочее давление газовой смеси менялось в диапазоне от 30 до 400 Торр, расход газов варьировался от 50 до 1000 мл/мин.

Основной особенностью данной системы, является то, что практически вся затрачиваемая энергия уходит на образование плазмы, а не на нагрев электродной системы, поскольку эффективная площадь электродов очень мала. Длина же плазменного шнура может достигать 30 и более см., что позволяет в системе нескольких шнуров покрывать поверхность площадью свыше 300 см<sup>2</sup>.

В результате горения разряда на достаточно высоких давлениях, происходит образование большого количества активных радикалов, необходимых для роста алмаза.

Подложки располагались на расстоянии 10-40 мм от плазменного шнура, в зависимости от необходимой температуры образца (700 – 1000 °С).

В результате проведенных исследований были получены образцы поликристаллических алмазных пленок на молибдене, кремнии, титане и оксиде алюминия. Скорость роста алмаза в случае сплошных пленок достигала 10 мкм/ч., а для отдельных изолированных кристаллитов была свыше 100 мкм/ч. Рост пленок наблюдался при температурах подложки от 700 до 1000 °С. Скорость роста пленок возрастала с ростом температуры.

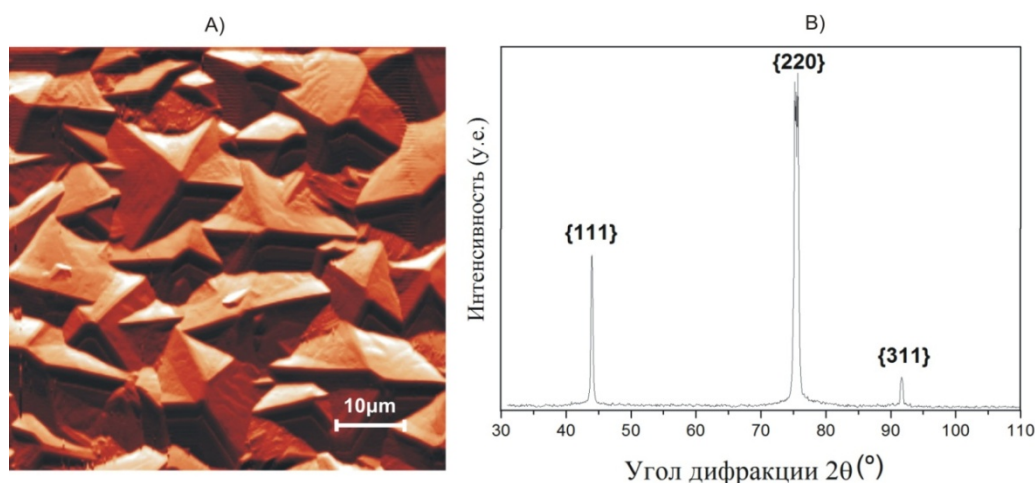


Рис.3. АСМ микрофотография и рентгеновская дифрактограмма полученной алмазной пленки.

Полученные алмазные пленки обладают высокой чистотой и кристаллическостью, на что указывают данные рентгенофазового и АСМ анализа. Дальнейшие эксперименты будут связаны с формированием защитных алмазных покрытий на керамических микросферах и могут служить основой для разработки высокопроизводительного оборудования для использования в технологии промышленного осаждения защитных покрытий на керамическое ядерное топливо.



### Литература

1. S. Matsumoto, Y. Sato, M. Kamo, and N. Setaka, Jpn. J. Appl. Phys. **21**, L183 (1982).
2. Пашнев В.К., Стрельницкий В.Е., Опалев О.А., Грицына В.И., Выровец И.И., Бизюков Ю.А., Брык В.В., Колупаева З.И. Осаждение алмазных покрытий с использованием тлеющего разряда, стабилизированного магнитным полем//Физическая инженерия поверхности.- Харьков (Украина). – 2003.- №1.- С. 49-55.
3. J.-K. Lee, K.Y. Eun, Y.-J. Baik, H.J. Cheon, J.W. Rhyu, T.J. Shin, J.-W. Park, Diamond Rel. Mater. **11** (2002) 463-466
4. Дерягин Б.В., Федосеев Д.В. Рост алмаза и графита из газовой фазы. М. Наука. – 1977. – 116с.
5. J. C. Angus, Z. Li, M. Sunkara, C. Lee, W. Lambrecht, R. L. and B. Segall, “DiamondNucleation,” Proceedings of Materials Research Society Symposium, Boston, MA, p. 128

## ИССЛЕДОВАНИЕ УПРУГИХ СВОЙСТВ КОНСТРУКЦИОННОГО АЛЮМИНИЕВОГО СПЛАВА ТИПА АМГ-2

И.Х. Абдукадырова

*Институт ядерной физики Академии наук Узбекистана. Ташкент  
(100214 Ташкент, пос. Улугбек, ИЯФ АН РУз. E-mail: [izida@inp.uz](mailto:izida@inp.uz))*

В условиях роста мирового энергопотребления исключительную важность приобретает решение проблем, связанных с обеспечением режима нераспространения, обращения с отработанным топливом, переходом на низкообогащенное топливо. В плане реализации последней проблемы в настоящее время проводятся работы на исследовательских реакторах на тепловых нейтронах по переходу их загрузки с высокообогащенного топлива (90%) на низкообогащенное топливо (36 и 20% -ного по  $^{235}\text{U}$ ), в которых в качестве конструкционного материала твэлов в тепловыделяющих сборках, стержней регулирования и других узлов активной зоны используются алюминиевые сплавы АМГ-2. В связи с этим в настоящее время один из важных вопросов состоит в изучении стойкости механических свойств подобных алюминиевых сплавов. Это и определило цель данной работы, в которой проводилось исследование механических свойств алюминиевого сплава типа АМГ-2 до и после действия на него радиации.

Для решения поставленной задачи привлекался метод ультразвукового резонанса [1], ценность которого возрастает на современном этапе развития науки и техники. Первоначально изучение механических свойств конструкционных сплавов АМГ-2 осуществлялось на исходной серии образцов №1, №2, №3, №4 и №5. Содержание элементного состава и структуры сплавов определялись на рентгеновском микроанализаторе “Jeol” JSM 5910 IV-Japan. В табл.1 приведено содержание элементов Mg, Al, Fe, Si и Cu для ряда исходных конструкционных материалов АМГ-2, использованных в данной работе.

С целью определения механических свойств в этих образцах возбуждались ультразвуковые колебания методом ультразвукового резонанса на лабораторной установке в диапазоне частот 20-200 кГц, регистрировались соответствующие спектры изгибных колебаний и их основные характеристики: амплитуда колебаний (А) и резонансные частоты (f). В качестве примера в табл.2 сведены дисперсионные зависимости экспериментальных резонансных частот изгибных колебаний, определенные из снятых в процессе эксперимента спектров.

Исходя из этих данных для набора образцов и таблиц [1], вычислялись значения упругих характеристик – коэффициентов  $K(m,n)$  и точных значений основных частот  $f(m,n)$  (табл. 2 и 3). Далее на основе полученных сведений на каждом из серии образцов вычисляли комплекс упругих характеристик материалов: модуль Юнга (E), модуль сдвига (G) и объемный модуль (B) (табл. 3).

Поскольку численные величины этих механических свойств АМГ-2 в печати не приводятся, проведена параллель между данными табл. 4 и известными данными для металлического алюминия [2]. Сделан вывод, что величина первых двух модулей (E, G) несколько больше, а вторых (B,  $\nu$ ) – меньше в сплаве, чем в Al. Это, видимо, обусловлено введением ряда примесей (Mg, Fe, Cu, Si) [3] в алюминиевую матрицу при спекании данного сплава, приводящим к изменению неоднородности материала и состояния структуры, появлению границ раздела и дефектов, что могло отразиться на величине механической деформации при распространении ультразвуковых волн в упругой среде сплава.

С целью определения устойчивости механических свойств АМГ-2 образцы выдерживались 2,5 месяца в естественных условиях хранения, повторные измерения необходимых спектров резонансных частот изгибных колебаний и соответствующие расчеты показали отсутствие постэффекта для рассмотренных модулей и старения сплава. С другой стороны, наведенные радиацией эффекты изучались путем последовательного набора поглощенных образцами доз ионизирующего излучения (D) в интервале от 0,1 до 20 МГр. В табл. 4 сведены экспериментально полученные дозовые зависимости комплекса упругих модулей (Юнга, сжатия, объемного и коэффициента Пуассона) обработанных пластин. Из таблицы видно нелинейное изменение функции E(D), которая после некоторого снижения около дозы 5 МГр с повышением дозы частично восстанавливается, а при предельной дозе ее ход стабилизируется. В целом для использованного интервала D имеет место некоторый радиационный эффект. Аналогичная радиационная кинетика обнаружена и для следующих функций G (D) и B (D) (табл. 4)..

Для сравнения пластины облучались в каналах реактора потоком  $\Phi=10^{17}-10^{18}$  см<sup>-2</sup>. Проведено вычисление по измеренным спектрам облученных образцов, дисперсионным зависимостям резонансных частот колебаний образцов модуля Юнга. Определено его значение:  $E=6,57 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>. Если сопоставить полученную величину с таковой гамма-облученного образца на первом этапе обработки ( $5 \cdot 10^6$  Гр,  $E=7,41 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>), когда поглощенные дозы сопоставимы, то видно, что радиационный эффект для данного модуля сплава в первом случае больше. Предполагается, что последнее связано с дополнительным вкладом в этот эффект нейтронной компоненты смешанного излучения реактора.

Упругие модули металлов и сплавов [4,5] заметно чувствительны к их структуре, несовершенствам, дислокациям, примесям, дефектам и могут изменяться под действиями даже незначительной обработки. По всей вероятности, эти факторы и сказались на их изменении в обработанном АМГ-2. Допускается возможность наличия следующего механизма модифицирования модулей упругости сплава: первоначальное снижение модулей при облучении обусловлено повреждением, деформацией и растяжением образцов в результате дефектообразования, роста концентрации точечных и протяженных дефектов (вакансий, внедренных атомов в решетке и новых дислокаций), а последующее их нарастание - дальнейшим накоплением дефектов, ростом релаксационных потерь [6], включающих дислокацию и дефекты, примеси, фазы внедрения и их продукты распада [3]. Предполагается, что этот механизм упрочнения в основном связан с закреплением дислокаций при осаждении данных нарушений, когда образуются комплексы: дислокация + вакансия (внедренный атом), приводящим к увеличению упругости материала.

Сравнительный анализ дозовых зависимостей набора модулей упругости сплава (табл.4) привел к следующему. Например, для модуля Юнга максимальный радиационный эффект составляет величину  $\Delta E_1=1$  ГПа, а при предельной дозе облучения  $\Delta E_2=0,6$  ГПа (что составляет 0,8%) и наблюдается значительный радиационный отжиг наведенного эффекта. Аналогичный эффект установлен для модуля сдвига и объемного модуля:  $\Delta G_1=0,4$  ГПа и  $\Delta G_2=0,2$  ГПа,  $\Delta V_1=1$  ГПа и  $\Delta V_2=0,6$  ГПа, а коэффициент Пуассона практически радиационно-устойчив.

#### ВЫВОДЫ

Изучены упругие свойства конструкционного алюминиевого сплава АМГ-2 до и после радиационной обработки с использованием метода ультразвука. Путем снятия спектров набора образцов и соответствующих расчетов установлены закономерности модифицирования ряда модулей упругости в облученных пластинках, прослежена устойчивость резонансных частот изгибных колебаний при обычных условиях выдержки. В частности, обнаружена нелинейная дозовая зависимость модуля Юнга, объемного модуля, модуля сжатия и коэффициента Пуассона сплава. Высказано предположение о механизме радиационного модифицирования упругих свойств сплава. Сделано заключение, что изученный комплекс механических свойств сплава, подвергнутого радиационной обработке набором доз излучения, претерпевает относительно небольшие изменения, что свидетельствует в пользу перспективности использования сплава на основе алюминия типа АМГ-2 в качестве конструкционного материала при изготовлении некоторых узлов атомных реакторов (например, оболочек твэлов в ТВС).

Табл. 1. Элементный состав алюминия и основных примесей (в %) в исходных образцах АМГ-2

сплав	№ образца	Mg	Al	Si	Mn	Fe	Cu	Сумма
АМГ-2	1	2,81	96,72	0,00	0,21	0,27	0,00	100,00
АМГ-2	2	2,77	96,65	0,00	0,27	0,25	0,07	100,00
АМГ-2	3	2,82	96,72	0,00	0,24	0,23	0,00	100,00
Среднее		2,80	96,70	0,00	0,24	0,25	0,02	100,00

Табл. 2. Экспериментально найденные значения резонансных частот колебаний (кГц) образцов № 1, № 2 и № 3

N	Образцы № 1	Образцы № 2	Образцы № 3
1	59,703	58,218	57,103
2	95,578	94,059	94,940
3	119,797	117,612	117,125
4	149,640	150,318	150,687
5	181,951	179,381	180,740

Табл.3. Основные характеристики параметров К и Е образцов № 1-3 в зависимости от частоты резонансных пиков

N	K(m,n)	f(m,n)	E, 10 <sup>10</sup> Н/м <sup>2</sup> : № 1, №2, №3		
1	0,1693	(0,2)	8,60	7,83	7,62
2	0,2842	(1,0)	7,52	7,26	7,30
3	0,3445	(0,3)	7,81	7,52	7,44
4	0,4546	(0,2)	7,20	7,26	7,28
5	0,5372	(1,1)	7,62	7,38	7,48

Табл. 4. Дозовая зависимость комплекса упругих параметров (E, G, V в ГПа и  $\nu$ )

№	Параметр	Доза, Гр, D=0	3.10 <sup>6</sup>	5.10 <sup>6</sup>	8.10 <sup>6</sup>	1,6.10 <sup>7</sup>	2,0.10 <sup>7</sup>
1	E	75,1	74,5	74,1	74,7	75,0	74,5

### *Nuclear Energy*

2	G	28,2	28,0	27,8	28,1	28,2	28,0
3	B	73,6	73,0	72,6	73,2	73,5	73,0
4	v	0,328	0,328	0,328	0,331	0,331	0,331

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. В.М Баранов. Ультразвуковые измерения в атомной технике. Атом издат. 1975, с. 264.
2. Металлургия и металловедение чистых металлов. Сборник под редакцией В.С. Евстюхина. М.: Атомиздат. 1969, с.199.
3. С.А. Байтелесов, А.А. Досимбаев, У.С. Салихбаев и др..Сборник докладов 7 международной конференции «Ядерная и радиационная физика», 26-29 мая 2007г. г. Алматы 2007, с.178.
4. И.А. Конозенко, М.И.Куликовская, Б.А.Данильченко, УФН **161**, 149 (1991).
5. Алюминиевые сплавы жаропрочные и высокопрочные сплавы. Ответственный редактор Фридляндер И.Н. М.: изд. Металлургия 1966, с.352.
6. Ультразвуковые методы исследования дислокаций. Сборник статей под редакцией Л.Г. Меркулова. М.: ИИЛ 1963, с.169-186.

### **К ВОПРОСУ О РАДИАЦИОННОМ РАЗОГРЕВЕ РЕАКТОРНЫХ МАТЕРИАЛОВ**

А.Т. Избасханова, Е.А. Кенжин

*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

#### ***Введение***

Мировые тенденции развития и международные нормы по безопасности объектов ядерной энергетики являются основополагающими в части увеличения эксплуатационной готовности существующих и проектируемых атомных электростанций. Улучшение глобальных показателей безопасности непосредственно зависит от нескольких факторов:

- эффективность принципов проектирования;
- повышение эксплуатационной надежности и, следовательно, увеличение срока службы не только реакторной установки, но и всех единиц оборудования входящего в состав атомной электростанции;
- повышение уровня экологической безопасности и недопущение выброса радиоактивных веществ в окружающую среду;
- усовершенствование мер по предотвращению аварийных событий.

Разработка и внедрение на современном этапе развития атомной энергетики экологически безопасных ядерных установок сдерживается технологическими пределами, превышение которых приводит к инцидентам, связанным в большинстве своем с нарушением целостности конструкции активной зоны ядерного реактора. Для рационального проектирования и обеспечения безопасной эксплуатации ядерно-энергетических установок, необходимо исследовать процессы и факторы совместное воздействие которых, на узлы конструкции ядерного реактора, приводит к изменению их физического состояния и оказывает значительное влияние на работоспособность всей установки в целом.

Так как в процессе работы материалы конструктивных элементов активной зоны находятся в состоянии термомеханического напряжения изменяющегося под воздействием радиационных механизмов, вопросы надежной и безотказной работы реактора в значительной степени определяются радиационным разогревом этих материалов. Для предсказания и уменьшения отрицательных эффектов размерных изменений элементов конструкции необходимо изучение этого физического явления. Также исследование процесса радиационного разогрева имеет фундаментальное значение для создания научных основ разработки новых радиационно-стойких материалов.

Определение закономерностей температуры радиационного разогрева реакторных материалов от параметров облучения, в достаточном объеме возможно лишь с использованием внутриреакторных методов исследования предоставляющих наиболее ценную и достоверную информацию. В перспективе испытаний тестирование необлученных материалов при воздействии высокопоточного нейтронного и гамма излучения в процессе работы реактора. Особое внимание при подготовке и проведении таких работ уделяется методикам измерений и расчетов параметров, определяющих условия испытания, тщательная оптимизация которых, является основным условием успешного проведения натурных экспериментов на исследовательских реакторах [1, 3, 4, 6, 7, 9].

#### ***Исследовательский реактор ИГР***

Для выполнения полномасштабных внутриреакторных исследований радиационного разогрева в качестве экспериментальной базы предложен уникальный и не имеющий действующих аналогов в мире исследовательский самогасящийся импульсный графитовый реактор ИГР. Режимы его работы являются:

- нерегулируемый режим «Вспышка» – режим самогасящейся нейтронной вспышки, в котором максимальное значение плотности потока тепловых нейтронов может достигать значений  $\sim 10^{17}$  н/(см<sup>2</sup>·с) при минимальной полуширине  $\sim 0,12$  с (см. рис. 1);
- регулируемый режим «Импульс» с длительным (до нескольких сотен секунд) поддержанием заданного уровня мощности. В этом режиме возможна реализация предельного для реактора ИГР энерговыделения - порядка 5,2 ГДж,

что приводит к разогреву активной зоны до 1400 К. Форма, амплитуда (уровень мощности) и длительность регулируемого режима могут быть самыми различными и определяются задачами испытаний (см. рис. 2).

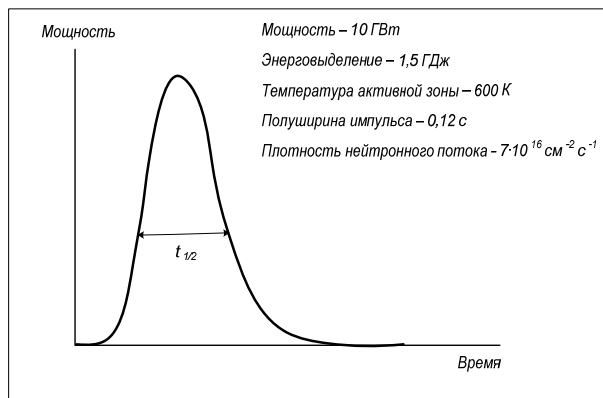


Рис. 1. Нерегулируемый режим работы реактора ИГР - «Вспышка»

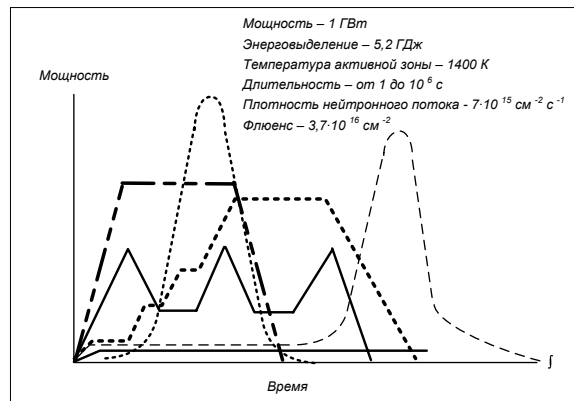


Рис. 2. Регулируемый режим работы реактора ИГР - «Импульс»

Каждому из этих режимов при их проведении предшествует режим «Критика», при осуществлении которого проверяется критическое состояние реактора. На этом режиме проводится оценка состояния реактора после загрузки в него объекта испытаний и делается сравнение с его исходным состоянием без объекта испытаний при нормальной (300 К) температуре активной зоны.

Выбор исследовательского реактора ИГР не был случайным, поскольку предназначенный для получения высокой плотности потоков нейтронов и гамма-излучения ( $4,78 \cdot 10^7$  рад) реактор обеспечивает возможность моделирования проектных и запроектных тепловых и радиационных нагрузок на объект испытаний, при имитации переходных и аварийных режимов работы [1, 8].

#### **Назначение и описание экспериментального устройства**

Для внутриреакторных исследований радиационного разогрева материалов тестируемых в активной зоне реактора, в условиях контролируемой теплоотдачи и варьируемого теплосъема было разработано и создано базовое экспериментальное устройство (ЭУ) РР-1, позволяющее проводить калориметрические и теплофизические эксперименты, на основе которого были разработаны его модификации РР-2 и РР-3. Использование в конструкции ЭУ экранов из нержавеющей стали (ЭУ РР-2) и кадмиевой фольги (ЭУ РР-3) позволяют в рамках одного эксперимента разделять нейтронную и гамма компоненты излучения и изменять их соотношение. Конструкция экспериментального устройства в трех модификациях делает возможным одновременное облучение большого количества материалов и обеспечивает повторяемость эксперимента для лучшей результативности испытываемых образцов.

Для замедления процесса остывания, уменьшения потерь тепла от образца и, следовательно, снижения погрешности полученных результатов в полости облучательных устройств обеспечен вакуум. Введение в конструкцию ЭУ РР-1, РР-2 и РР-3 ловушки предназначенной для приема расплава и обеспечивающей защиту стенок корпуса ЭУ от прямого контакта с расплавом, позволяет в дальнейшем проводить эксперименты с плавлением материалов. Также обоснован выбор и геометрические параметры образцов исследуемых материалов располагаемых в этих устройствах при их тестировании в активной зоне реактора ИГР.

Одним из основных критериев безопасного проведения данных исследований является обеспечение целостности силового корпуса ЭУ в заданных условиях облучения, в качестве защитного барьера обеспечивающего одновременно защиту неподвижной ампулы НА-228 и, следовательно, реактора ИГР от любого разрушающего воздействия со стороны экспериментального устройства, принудительное охлаждение которого отсутствует [1, 5, 8].

#### **Система регистрации параметров облучения**

Путем подбора характеристик отвечающих требованиям и условиям безопасного проведения экспериментальных работ была разработана оптимальная система регистрации параметров облучения. Система, состоящая из системы регистрации нейтронного и гамма излучения и системы измерения температур, обеспечивает контактные и высокоточные измерения тепловых характеристик каждого из исследуемых образцов.

Система регистрации нейтронного и гамма излучения содержит: малогабаритные триаксиальные ионизационные камеры деления типа КтВ, комптоновский эмиссионный детектор нейтронов кабельного типа – КЭДН, проволочные активационные детекторы и детекторы ионизирующего излучения. Разработанная методика регистрации гамма излучения, основанная на использовании в качестве детекторов ионизирующего излучения – таблеток термлюминофора из бората магния может быть в дальнейшем использована при проведении экспериментальных работ.

Система измерения температур являет собой набор различного типа термоэлектрических преобразователей, так называемых термопар. Для данных исследований были подобраны и прокалиброваны при известных параметрах работы реактора ИГР термопары с металлическими электродами, имеющие номинальные статические характеристики типов ТХА (К), ТХК (L) и ТВР (А) [1, 8].

#### **Исходные данные**

Внутриреакторное тестирование материалов сопровождается материаловедческими исследованиями и численными анализами с использованием программ МСНР и ПРИЗМА-Д. Расчетные коды этих программ позволяют проводить

численное моделирование каких-либо процессов и явлений, происходящих в реакторной установке, а полученные результаты в свою очередь определяют условия проведения экспериментов.

Возможность применения данных программ обеспечивается верифицированной расчетной моделью, максимально приближенной к реальной конструкции реактора ИГР: заданы зазоры между колоннами кладки в активной зоне и в отражателе, задана переменная концентрация урана по топливным блокам.

На точность моделирования процесса будут влиять многие особенности реактора ИГР. Так, на абсолютное значение и интенсивность энерговыделения в экспериментальном устройстве будут влиять эффекты просветления и изменения спектра нейтронов в центральном экспериментальном канале. На профиль энерговыделения будет влиять изменение распределения числа делений по высоте канала и эффекты возмущения нейтронного поля вследствие перемещения стержней СУЗ. Изменение времени жизни нейтронов окажет влияние на скорость ввода энергии в образцах, радиационный разогрев материалов повлияет на температурные деформации и внесет погрешности при измерении температуры тестируемых образцов и элементов конструкции облучательного устройства [2, 3, 8].

**Результаты нейтронно-физических и теплофизических расчетов**

Для проведения серии физических экспериментов по исследованию радиационного разогрева материалов, используемых в реакторостроении, были отработаны так называемые «пусковые условия». Выбраны предварительные режимы работы реактора «Вспышка» (№1 и №2) и «Импульс» (№№ 3÷13). Отработаны диаграммы пусков для данных режимов, т. е. заданы значения мощности (от 0,250 до 5000 МВт), величины энерговыделения (от 10 до 5200 МДж) и рассчитана продолжительность каждого пуска (от 0,24 до 4000 с). При этом выбор режимов и параметров облучения исследуемых образцов был сделан, исходя из установленных для реактора ИГР эксплуатационных пределов.

Для обоснования возможности проведения реакторных испытаний при заданных пусковых параметрах обязательным условием является проведение нейтронно-физического и теплофизического расчетов. Все предварительные нейтронно-физические расчеты были проведены с помощью программы MCNP5 для режима «критичности». Внутри активной зоны расчетной модели реактора построена геометрия облучаемого ЭУ. В расчетах принято, что центр активной части экспериментального устройства совпадает с центром активной зоны реактора, а температура активной зоны реактора и тестируемых материалов ЭУ равна 300К. Также в расчете учтено, что стержни управления находятся в верхнем положении. В программу также заложены геометрические параметры самого ЭУ, изотопный состав всех материалов располагаемых в активной зоне и ядерная концентрация данного изотопного состава.

Цель численного анализа заключается в расчетном определении энерговыделения в образцах как исследуемых, так и конструкционных материалов, располагаемых в ЭУ РР-1, РР-2, РР-3 и определение значения эффективного коэффициента размножения нейтронов системы «ЭУ РР – реактор ИГР». Нейтронно-физические расчеты для данной серии экспериментов были выполнены для девяти миллионов историй. Результаты расчета эффективного коэффициента размножения нейтронов системы «ЭУ РР – реактор ИГР» приведены на рис. 3.

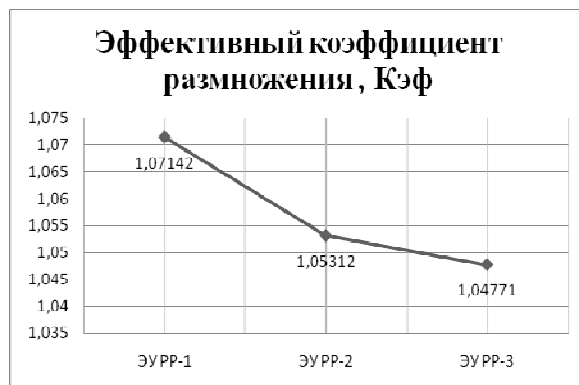


Рис. 3. Результаты расчета эффективного коэффициента размножения

По итогам расчета  $K_{эф}$  видно, что система «ЭУ РР - реактор ИГР» надкритична для всех вариантов компоновки ЭУ, а наименьшая реактивность будет у системы «ЭУ РР-3 - реактор ИГР». Результаты расчетов удельной мощности энерговыделения в образцах при мощности реактора 1 МВт представлены на рис. 4 [1-4, 7].

Теплофизический расчет проводился с использованием представленных параметров энерговыделения и с учетом выбранных режимов облучения. В результате выполненных теплофизических расчетов было определено, что во время экспериментов на режиме «Вспышка» только температура образцов из свинца будет сравнима с температурой плавления. Остальные образцы будут иметь температуру намного ниже температуры плавления материала, из которого они изготовлены.

Увеличение длительности эксперимента на режиме «Импульс» в ЭУ РР-1 с 3 до 4000 с приводит к заметному уменьшению максимальной температуры образцов. Приращение температуры образцов из вольфрама, тантала и свинца снижается на 60 %, образцов из кобальта и циркония – на 40 %, образцов из молибдена, графита и цинка – на 30 %, образцов из меди и никеля – на 20 %, образцов из бериллия – на 8 %. Во время экспериментов на режиме «Импульс» длительностью менее 12 с расчетная максимальная температура образцов в ЭУ РР-1, РР-2 практически совпадает с максимальной температурой образцов во время режима «Вспышка».

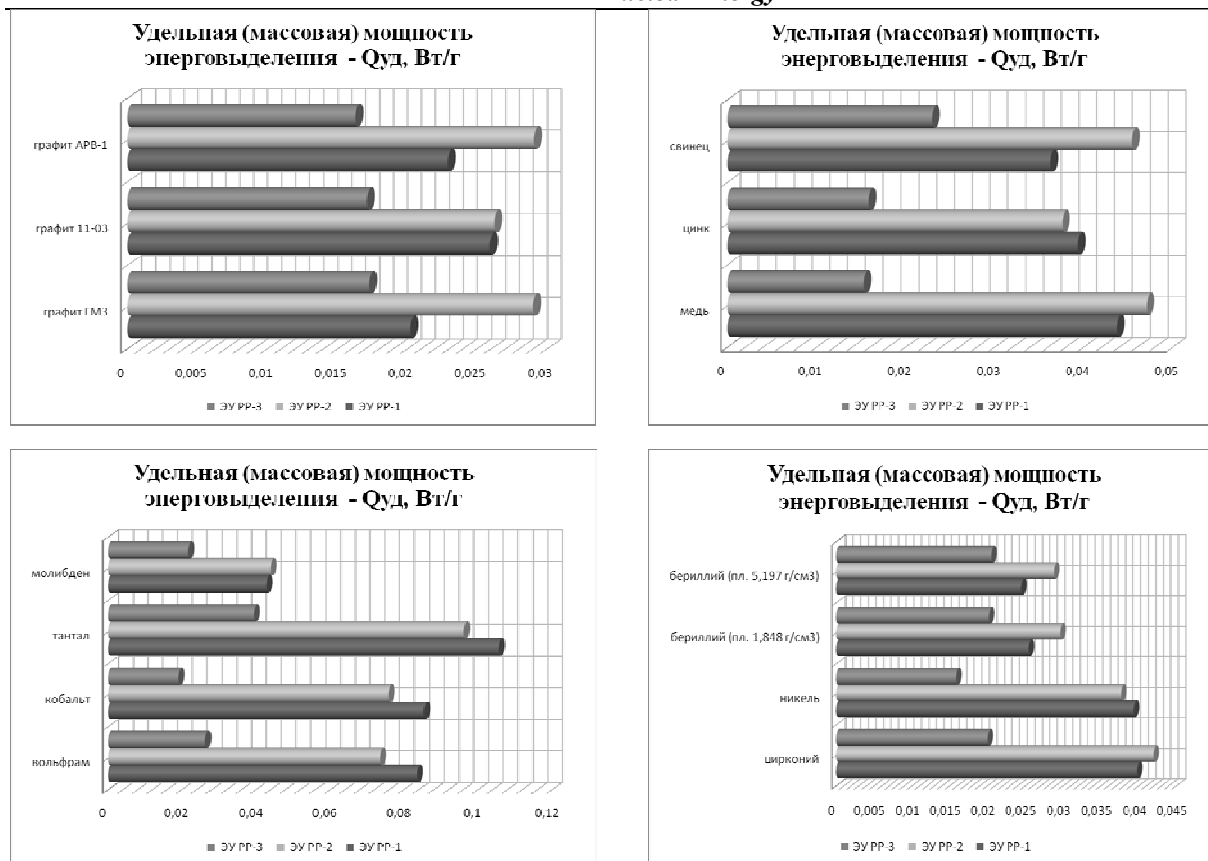


Рис. 4. Удельная мощность энерговыделения в образцах тестируемых материалов

Невозможно планировать эксперименты с образцами из тантала, вольфрама в ЭУ РР-1 и РР-2 на экспериментах с энерговыделением более 2,5 МДж, так как максимальная температура образцов из этих материалов превышает максимальную постоянную рабочую температуру кварцевого стекла КС-4В, из которого сделаны ложементы, равную 1223 К (950 °С). Граничное энерговыделение в реакторе ИГР для таблеток – детекторов из бората магния (индикаторов гамма излучения) равно 150 МДж, так как при этом температура таблеток – детекторов достигает 743 К (470 °С), при которой происходит их отжигание.

Также было установлено, что экран, выполненный из кадмиевой фольги, установленный в ЭУ РР-3 нельзя применять при энерговыделении в реакторе ИГР более 20 МДж. Максимальная температура кадмиевого экрана во время экспериментов с энерговыделением в реакторе ИГР до 20 МДж составит 444 К (171 °С) и будет выше максимальной температуры образцов [1-3, 5, 7].

**Заключение**

На основании данных полученных в результате нейтронно-физических и теплофизических расчетов было спрогнозировано «поведение», как исследуемых образцов, так и конструкционных материалов ЭУ РР. Было определено, что разработанная конструкция ЭУ РР-1, РР-2, РР-3 и система регистрации параметров облучения допускают получение предельных нейтронных потоков, как по длительности, так и по интенсивности нейтронного излучения. Сочетание спектра радиационного воздействия, широких пределов изменения температур в процессе облучения позволяет упростить проведение материаловедческих экспериментальных исследований, связанных с исключением дополнительных внешних нагревателей.

По итогам расчетов были установлены границы применимости представленного модельного ряда экспериментальных устройств. Соблюдение предложенных ограничений по эксплуатационным параметрам, как для исследуемых образцов, так и материалов ЭУ РР позволяет обеспечить безопасность при облучении на реакторе ИГР [4, 5, 7, 8].

В эпоху реакторов нового поколения возникает необходимость в создании радиационно-стойких материалов, отвечающих требованиям современных технологий. Установлено, что планируемые на реакторе ИГР исследования радиационного разогрева позволят определить для реакторных материалов эксплуатационные пределы (при которых они еще не теряют свою работоспособность) и критические параметры (приводящие к их деформации и разрушению). Полученные результаты, заложенные в банк данных, предоставляют возможность для разработки принципиальных подходов к созданию новых материалов и конструированию экологически безопасных ядерно-энергетических установок [9].

**Список использованной литературы**

1. Избасханова, А.Т. Выбор и обоснование параметров работы реактора ИГР для исследования радиационного разогрева материалов / А. Т. Избасханова, Е. А. Кенжин // Вестник НЯЦ РК. – 2010. – № 2(42). – С. 34-42, ISSN 1729-7516.

2. Исследования радиационного разогрева реакторных материалов / Е. А. Кенжин, А. Т. Избасханова // *Фундаментальные и прикладные проблемы науки : сборник научных трудов VI Междунар. симп.*, Миасс, 13-15 сентября 2011. – М.: РАН 2011 (в печати).
3. Кадыржанов, К.К. Радиационный разогрев материалов высокопоточным излучением импульсно-графитового реактора (ИГР) / К. К. Кадыржанов, Е. А. Кенжин, А. Т. Избасханова // *Вестник НИА РК.* – 2011. – № 2(40). – С. 88-94, ISSN 1606-146X.
4. Расчет нейтронно-физических характеристик экспериментального устройства РР : расчет / ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК.–Курчатов, 27.09.2010.– 8 с.– Инв. № 129/13-240-02.
5. Расчет температуры образцов материалов, находящихся в экспериментальных устройствах РР-1, РР-2, РР-3 реактора ИГР : расчет / ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК.–Курчатов, 30.09.2010.– 14 с.– Инв. № 13-240-02/131.
6. Самсонов, Б.В. Реакторные методы материаловедения / Б.В. Самсонов, В.А. Цыканов.– М. : Энергоатомиздат, 1991.– 248 с.– ISBN 5-283-03730-4.
7. Чиркин, В. С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники / В. С. Чиркин.– М. : Атомиздат, 1968.– 484 с.
8. Экспериментальный комплекс по изучению радиационного разогрева материалов, используемых в реакторостроении / А. Т. Избасханова, Е. А. Кенжин // *Актуальные проблемы урановой промышленности : сборник докладов VI Междунар. конф.* Алматы, 14–16 сентября 2010.– Алматы : НАК КАЗАТОМПРОМ, 2010.– С. 542-551.
9. Ядерно - энергетическая отрасль Республики Казахстан / Под. ред. К.К. Кадыржанова, Ж.Р. Жотабаева.–Курчатов : НЯЦ РК, 2007. –128 с.– ISBN 9965-675-38-4.

УДК 621.039.51

### КОНВЕРСИЯ РЕАКТОРА ИВГ.1М

И.В. Прозорова, Ю.В. Алейников, У. А. Жумадилова

*Институт атомной энергии Национального ядерного центра, г. Курчатов, Республика Казахстан, [Prozorova@nnc.kz](mailto:Prozorova@nnc.kz)*

*Рассмотрены различные пути конверсии реактора при переводе на низкообогащенное топливо. Показано, что во всех вариантах конверсии активной зоны такой важный показатель как плотность потока тепловых нейтронов снижается на 5-20 %.*

#### **Введение**

Исследовательский водоохлаждаемый реактор ИВГ.1М был создан на базе высокотемпературного газоохлаждаемого реактора ИВГ.1, который с 1975 по 1988 годы использовался для испытания газоохлаждаемых тепловыделяющих сборок высокотемпературных реакторов. Основной целью реконструкции реактора ИВГ.1М, проведенной до 1990 года, являлось создание водоохлаждаемой реакторной установки для петлевых экспериментальных исследований, направленных на обоснование безопасности объектов атомной энергетики, ядерной техники и технологии. Топливом в нем является уран-циркониевая композиция с обогащением 90 % по  $^{235}\text{U}$ .

Для расширения экспериментальных возможностей предполагается проведение модернизации реакторной установки ИВГ.1М, в рамках которой планируется перевод реактора на новое топливо и проведение реконструкции системы водяного охлаждения реактора. Одновременно должна быть решена и задача конверсии активной зоны (АЗ) - снижение обогащения топлива исследовательского реактора, которое исключила бы работу с материалом, из которого возможно извлечение высокообогащенного урана.

#### **Описание реактора**

Реактор ИВГ.1М [1] представляет собой исследовательский водо-водяной гетерогенный реактор на тепловых нейтронах с легководными замедлителем и теплоносителем и бериллиевым отражателем нейтронов. Мощность реактора, включая мощность объекта испытаний в центральной ячейке (проектная номинальная мощность) – 72 МВт. В связи с тем, что в настоящее время модернизация системы охлаждения реактора не проведена в полном объеме, номинальная мощность реактора ограничивается мощностью 35 МВт (достигнутой на энергопуске). Мощность реактора, на которой проводятся исследовательские пуски реактора ИВГ.1М в настоящее время установлена в пределах до 9 МВт.

АЗ реактора представляет собой набор из 30 водоохлаждаемых технологических каналов (ВОТК) с ТВС. Тепловыделяющая сборка состоит из тонкостенной цилиндрической обоймы, торцевых проницаемых решеток и пакета твэлов (спирально-стержневых, двухлопастного профиля), уложенных по треугольной решетке и уплотненных с помощью цилиндрических заполнителей. Обогащение уран-циркониевого топлива 90%. Масса изотопа урана-235 составляет 4,9 кг. В межканальном пространстве активной зоны установлены бериллиевые вытеснители.

Конструкцией реактора предусмотрены боковой и нижний торцевой отражатели из бериллия. В боковом кольцевом отражателе находятся регулирующие органы реактора - поворотные регулирующие барабаны (РБ), количеством 10 штук, расположены равномерно по окружности вокруг АЗ, суммарная эффективность системы РБ ~ 11,3  $\beta_{\text{эф}}$ .

Центральный петлевой канал реактора окружен центральным бериллиевым вытеснителем, в котором на окружности находятся перемещаемые бериллиевые стержни компенсации реактивности (СКР). При извлечении, которых из

активной зоны освобождающейся объем заполняется окружающей водой, выполняющей роль дополнительного поглотителя. Эффективность системы из 12 СКР  $4,8 \pm 0,1 \beta_{эф}$ .

Избыточная реактивность с введенными стержнями компенсации реактивности (СКР) на момент проведения физического пуска, 1990 год составляла  $4,0 \pm 0,2 \beta_{эф}$ , но на данный момент она составляет всего  $0,9 \beta_{эф}$ . Такое снижение избыточной реактивности связано, во-первых, с выгоранием топлива - с 1990 года по настоящий момент выгорело

73 г урана-235, и, во вторых, непосредственно с процессами зашлаковывания.

Для расширения экспериментальных возможностей предполагается проведение модернизации реакторной установки ИВГ.1М, в рамках которой планируется перевод реактора на новое топливо и проведение реконструкции системы водяного охлаждения реактора. Одновременно должна быть решена и задача конверсии АЗ - снижение обогащения топлива исследовательского реактора, которая исключила бы работу с материалом, из которого возможно извлечение высокообогащенного урана. При этом внешний контур ТК должен совпадать с контуром ВОТК, установленных в настоящее время в реакторе. Поэтому во всех рассмотренных вариантах из узлов ВОТК изменению подвергается лишь ТВС. Остальные узлы при разработке предполагается сохранить.

**Расчетная база и модель**

Для проведения нейтронно-физического расчета реактора ИВГ.1М используются расчетный код MCNP5 [2] предназначенный для математического моделирования систем, размножающих нейтроны, фотоны, электроны. Программное средство позволяет вычислять следующие нейтронно-физические характеристики систем: эффективный коэффициент размножения; время жизни нейтронов; энерговыделение и плотности потоков частиц; скорости реакций деления, поглощения и активации.

При подготовке расчетной модели учтены характерные особенности конструкции ТВС ВОТК и активной зоны, температурные режимы элементов конструкции реактора, включены программные опции наилучшим образом моделирующие процессы взаимодействия нейтронов с веществом. Основные особенности расчетной модели приведены ниже:

- ТВС ВОТК задана гетерогенной структурой. В ВОТК 1 и 2 ряда топливная зона по высоте составляет 800 мм и набирается из двух пакетов твэлов с длиной 600 мм и 200 мм, соответственно. Количество твэлов длиной 600 мм в пакете составляет – 468, а количество твэлов длиной 200 мм в пакете составляет – 456. Для ВОТК 3 ряда топливная зона по высоте составляет 600 мм, количество твэлов в пакете – 468. Для дистанционирования твэлов в каждом ВОТК используется 24 заполнителя из сплава Э110 диаметром 2,2 мм и 12 заполнителей диаметром 1,6 мм.

- предусмотрена возможность изменения положения стержней СКР и изменения углового положения регулирующих барабанов от 0 градусов (поглощающие элементы направлены в сторону активной зоны) до 180 градусов (поглощающие элементы направлены в противоположную сторону от активной зоны). Вращение барабанов осуществляется по часовой стрелке при виде сверху на реактор.

**Увеличение концентрации урана в твэлах существующей конструкции.**

Существующий твэл представляет собой стержневой твэл (рис.1) с циркониевым покрытием и топливным сердечником из уран-циркониевого сплава, обогащение урана – 90 %. При этом длина ТВС в 1 и 2 рядах равна 800 мм, а в 3 ряду – 600 мм. При осуществлении конверсии длину ТВС для всех рядов предполагается установить 800 мм.

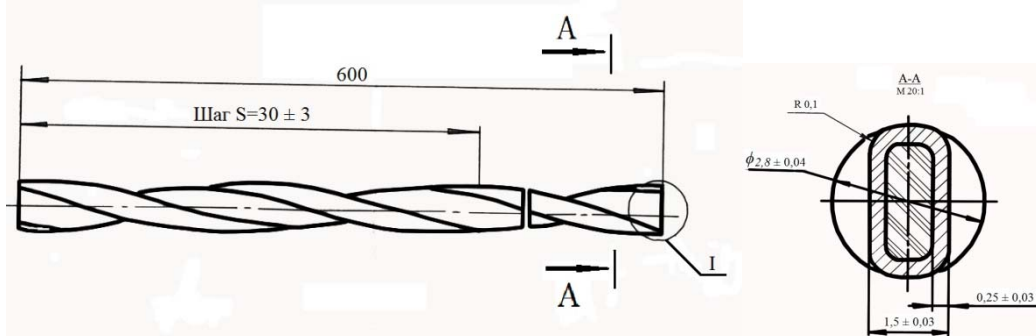


Рис. 1. Внешний вид твэла

Методика расчетов предлагаемого варианта АЗ заключалась в следующем: с целью снижения обогащения без изменения конструкции в состав существующего топлива добавляли изотоп урана-238, снижая до 20-процентного порога по обогащению за счет уменьшения количества циркония в сплаве. Но изотоп уран-238 имеет относительно большое сечение поглощения, и если расчетный запас реактивности был меньше необходимого, увеличивали содержание изотопа урана-235. Затем необходимо было оценить обогащение, и если оно превышало 20 %, снова увеличивали содержание изотопа урана-238. Процесс итерации продолжался до получения приемлемых значений по запасу реактивности.

Ниже представлен разрез ТВС (рис. 2) со стержневыми твэлами для существующей и конверсионной АЗ.



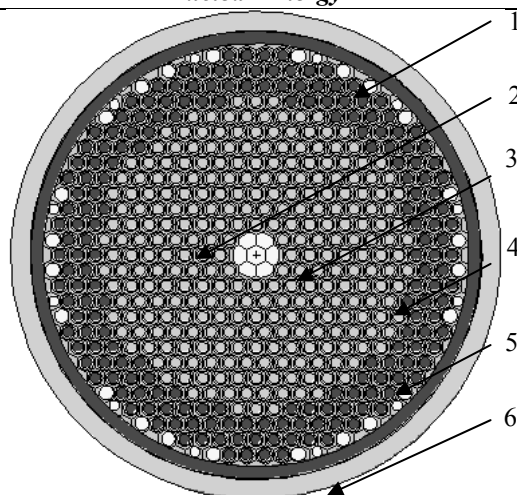


Рис. 2. Разрез ТВС со стержневыми твэлами для существующей и конверсионной АЗ: 1-заполнитель; 2- центральный стержень; 3-твэл центральной зоны профилирования; 4- твэл периферийной зоны профилирования; 5-обойма ТВС; 6- корпус БОТК

По результатам расчетов можно сделать следующие выводы: при снижении обогащения существующего топлива до 20 % реактор становится подкритичным, для достижения такого же значения запаса реактивности, какой имеется у реактора ИВГ.1М в настоящее время, необходимо увеличить массу изотопа урана-235 в 1,2 раза, при этом значение плотности потока тепловых нейтронов в центре канала ФКЭ по мере роста массы урана незначительно уменьшается, что объясняется увеличением массы изотопа урана-238. Наиболее приемлемым представляется вариант с загрузкой 6,5 кг изотопа урана-235. При этом запас реактивности увеличится и составит  $4,8 \pm 0,2 \beta_{эф}$ , а поток тепловых нейтронов в ФКЭ составит 96% от ныне существующего.

#### Использование твэлов на основе диоксида урана

Конверсия с использованием этого варианта основана на использовании модифицированных твэлов реакторов ВВЭР-1000, топливные сердечники которых производятся в Республике Казахстан.

Одна из возможностей последующей модернизации топлива этого реактора была представлена в [3]. Она основана на замене шести каналов БОТК первого ряда на каналы ИВГ1.2М с твэлами на основе топливных сердечников реактора ВВЭР-1000 с обогащением 10 %.

Рассматривался вариант с полной заменой АЗ на модифицированные твэлы реактора ВВЭР-1000. При выборе оптимального варианта размещения топлива в ТВС были сделаны попытки расстановки твэлов в ТВС в виде однорядного и двурядного кольца, что имело положительные стороны:

- уменьшение топливного слоя, и как следствие уменьшение блок-эффекта и возможность увеличения потока тепловых нейтронов.
- отказ от профилированной загрузки по радиусу.

Конструкция твэла (рис. 3) представляет собой набор топливных таблеток (поз. 3), заключенных в цилиндрическую оболочку (поз. 4), из циркониевого сплава, закрытых с двух сторон заглушками (поз. 1). Была выбрана ТВС содержащая 22 твэла (рис. 4). Оси твэлов расположены на двух окружностях, центром которых является ось ТВС, которая представляет собой трубу (поз. 4) внутренним диаметром 18 мм и толщиной стенки 2 мм. Внутри стержня ТВС располагаются дополнительные поглотители нейтронов (поз. 6). Бериллиевый вытеснитель (поз. 7) вдевается в стержень ТВС. Элементы ТК выполнены из тех же материалов, что и БОТК реактора ИВГ1.М. Длину активной части для всех рядов предполагается установить 800 мм.

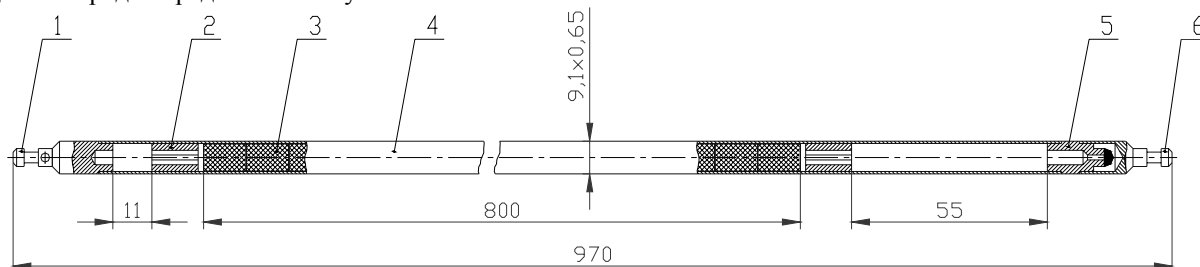


Рис 3. Твэл реактора ИВГ1.2М: 1 – нижняя заглушка, 2 – разрезная втулка, 3 – топливная таблетка, 4 – защитная оболочка, 5 втулка, 6 – наконечник.

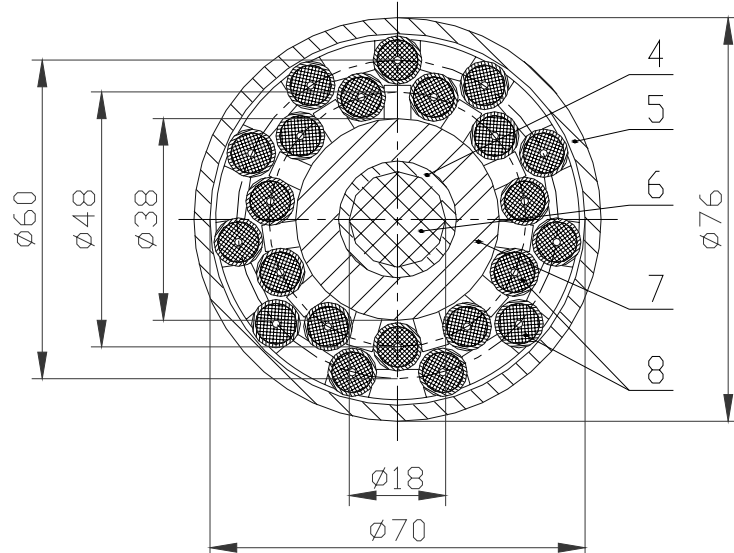


Рис. 4. Поперечный разрез ТК реактора ИВГ1.2М в районе активной зоны: 4 – труба для установки поглотителя нейтронов, 5 – корпус ТК, 6 – поглотитель нейтронов, 7 – бериллиевый вытеснитель, 8 – ТВЭЛ

По результатам расчетов с таким вариантом АЗ можно сделать следующие выводы: во всех случаях, когда используется топливо из диоксида урана с обогащением выше 3 %, обеспечивается повышение запаса реактивности. Рассматривались варианты с обогащением от 3 до 12 %. Значения плотности потока нейтронов во всех рассмотренных случаях приблизительно одинаковы, но меньше чем существующее значение. Наиболее приемлемым представляется вариант с обогащением диоксида урана 10 %. При полной замене каналов топливом с обогащением 10% реактор имеет запас реактивности  $18,2 \pm 0,2 \beta_{эф}$ , что превышает эффективность существующих органов регулирования. Для компенсации избыточной реактивности предполагается дополнительный ввод регулирующих стержней в модернизированные ТВС реактора. При этом запас реактивности составит  $4,8 \pm 0,2 \beta_{эф}$ , а поток тепловых нейтронов в ФКЭ уменьшится на 20 % по сравнению с существующим.

#### Использование керметных ТВЭЛ

Конверсия с использованием данного варианта основана на использовании ТВЭЛ с керметным топливом пониженного обогащения. Для иллюстрации чертеж общего вида ТВЭЛ показан ниже (рис. 5). Предлагаемый керметный ТВЭЛ [4,5] отличается от ТВЭЛ с керамическим топливом и известных ТВЭЛ дисперсионного типа тем, что: керметный топливный сердечник имеет матричную структуру, исключая контакты между топливными частицами размером 350-500 мкм, при объемной доле ядерного топлива в композиции 60-70 %.

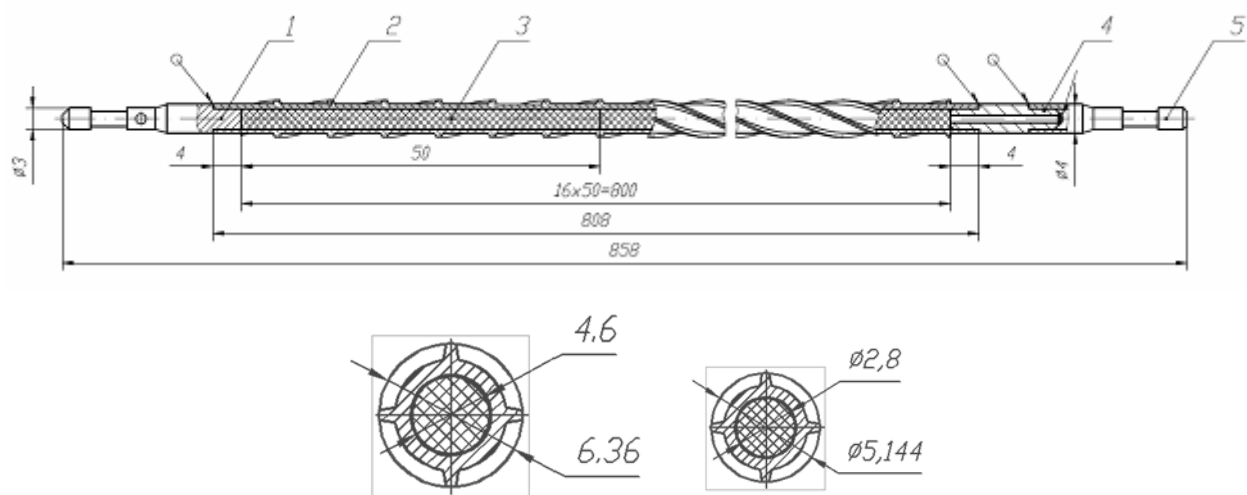


Рис. 5. Керметный ТВЭЛ: 1 – заглушка, 2 – оболочка, 3 – топливная часть, 4 – втулка, 5 – наконечник

Сердечник ТВЭЛ (поз.3) состоит из металлической матрицы из циркониевого сплава, в которой находятся частицы  $UO_2$  с обогащением 20 %. В ТВС данной конструкции размещается 90 ТВЭЛ с диаметром ТВЭЛ 5,7 мм (сердечник 4,6 мм). Второй вариант – использование того же самого цилиндрического ТВЭЛ, но меньшего диаметра (4 мм, сердечник 2,8 мм) и создающего большее проходное сечение. Таких ТВЭЛ в ТВС может быть размещено 150 шт. Данные по топливной загрузке АЗ с керметным топливом приведены в таблице 1.

Данные по топливной загрузке АЗ с керметным топливом

Наименование параметра	Вариант конструкции ТВС	
	1 (90 твэлов)	2 (150 твэлов)
Диаметр твэла, мм	5,7	4,0
Доля диоксида урана в сердечнике, %	13,40	16,34
Масса изотопа урана $^{235}\text{U}$ в ТВС, кг	0,209	0,164
Масса изотопа урана $^{235}\text{U}$ в АЗ, кг	6,273	4,927
Масса керметного топлива в АЗ, кг	209,11	172,84
$\rho, \beta_{\text{эф}}$	3,13	3,18
Эффективность системы РБ, $\beta_{\text{эф}}$	13,68	11,10
$\Phi_{\text{T}}$ , отн.ед.	0,989	0,948

Горизонтальный разрез двух вариантов модели ТВС представлен на рисунке 6.

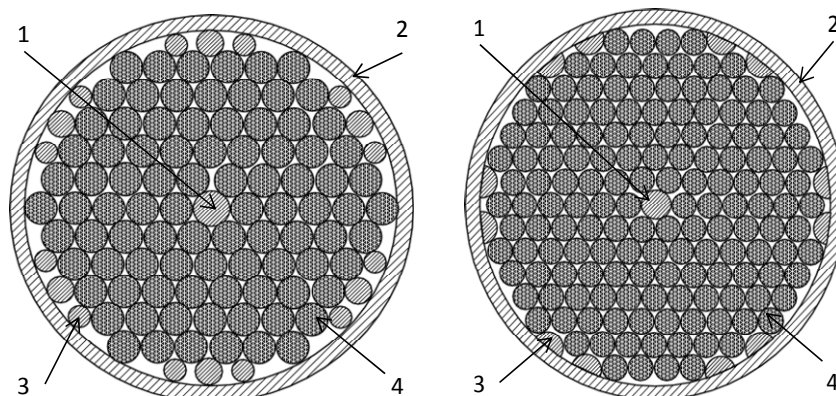


Рис. 6. Горизонтальный разрез двух вариантов модели ТВС: 1-центральный стержень; 2 – корпус ТК; 3- заполнители; 4- твэлы

По результатам расчетов можно сделать следующие выводы: для всех вариантов конструкции ТВС значения избыточной реактивности составляют примерно  $3,2 \beta_{\text{эф}}$ , значения плотности потока тепловых нейтронов  $\Phi_{\text{T}}$  для обоих вариантов конструкции ТВС меньше значения  $\Phi_{\text{T}}$  для существующей высокообогащенной АЗ менее чем на 5 %.

**Твэлы контейнерного типа с топливным сердечником на основе ураноемких топливных композиций.**

В качестве топлива в АЗ предполагается использовать твэлы контейнерного типа с топливным сердечником на основе ураноемких топливных композиций (нитридное соединение урана) с обогащением 20 % по изотопу урана-235. При этом изменению подвергается лишь конструкция ТВС основные узлы ТК будут сохранены. В ТВС данной конструкции также как и в случае с керметными твэлами может быть размещено 90 и 150 твэлов (меньшего диаметра). В итоге были выбраны четыре варианта АЗ с нитридными топливами, отличающиеся количеством твэлов в ТВС и различными материалами матриц:

- ТВС из 90 твэлов, матрица твэла из сплава на основе циркония (первый вариант);
- ТВС из 150 твэлов, матрица твэла из сплава на основе циркония (второй вариант);
- ТВС из 90 твэлов, матрица твэла из сплава на основе алюминия (третий вариант);
- ТВС из 150 твэлов, матрица твэла из сплава на основе алюминия (четвертый вариант).

Схема нитридного твэла для моделей ТВС совпадает со схемой керметного приведенного выше. Для всех вариантов длина АЗ составляет 800 мм, сохраняется корпус ВОТК из сплава АМГ-5 диаметром 76 мм с толщиной стенки 3 мм. Внутри корпуса между двумя торцевыми решетками из сплава АМГ-5, соединенными центральным стержнем, располагаются цилиндрические твэлы со спиральными ребрами.

При выборе оптимальных вариантов АЗ рассматривались модели, для которых значение реактивности находилось в пределах существующего значения. Изменение реактивности достигалось изменением доли нитрида урана в матрице. Данные по топливной загрузке АЗ приведены в таблице 2.

Таблица 2

Данные по топливной загрузке АЗ с нитридным топливом

Наименование параметра	Первый вариант	Второй вариант	Третий вариант	Четвертый вариант
Количество твэлов	90	150	90	150
Диаметр твэла, мм	5,7	4	5,7	4
Материал матрицы	Сплав на основе циркония	Сплав на основе циркония	Сплав на основе алюминия	Сплав на основе алюминия

### Nuclear Energy

Доля нитрида урана в сердечнике, %	14,377	16,617	20,597	22,617
Масса изотопа урана $^{235}\text{U}$ в ТВС, кг	0,247	0,182	0,277	0,197
Масса изотопа урана $^{235}\text{U}$ в АЗ, кг	7,404	5,471	8,310	5,926
Масса нитридного топлива в АЗ, кг	275,465	176,095	215,812	140,139
$\rho$ , $\beta_{\text{эф}}$	3,17	3,13	3,19	3,15
Эффективность системы РБ, $\beta_{\text{эф}}$	13,202	10,62	12,94	10,99
$\Phi_{\text{т}}$ , отн.ед.	0,969	0,935	0,948	0,913

По результатам расчетов можно сделать следующие выводы: для всех вариантов конструкции ТВС значения  $\rho$  составляют 3,2  $\beta_{\text{эф}}$ , значения плотности потока тепловых нейтронов  $\Phi_{\text{т}}$  для всех вариантов конструкции ТВС меньше значения  $\Phi_{\text{т}}$  для существующей высокообогащенной АЗ менее чем на 9 %.

#### Закключение

Данные исследования конверсии реактора позволили показать возможность сохранения уникальной реакторной базы ИАЭ и уменьшить количество используемого на территории РК ядерного топлива высокой степени обогащения, пригодного для использования в качестве оружейного.

Были рассмотрены различные пути конверсии реактора при переводе на низкообогащенное топливо:

- увеличение концентрации урана в твэлах ТВС ВОТК существующей конструкции.
- использование твэлов на основе диоксида урана (твэлы ВВЭР), производство которых возможно на территории Казахстана.
- использование керметных твэлов на основе диоксидных микротвэлов, распределенных в металлической циркониевой матрице.
- использование твэлов контейнерного типа с топливным сердечником на основе нитридных соединений урана.

Все варианты возможны, во всех вариантах такой важный показатель как плотность потока тепловых нейтронов снижается на 5-20 %.

Основными приоритетами будут являться экономические, и как следствие, те, которые потребуют наименьшей переделки АЗ. Поэтому наиболее перспективным представляется вариант с использованием низкообогащенных уран-циркониевых твэлов с увеличенной концентрацией урана.

При конверсии предполагается сохранить возможность для испытаний ТВС газоохлаждаемых реакторов, в том числе реакторов ЯРД и ЯЭДУ, и модельных ТВС водоохлаждаемых реакторов в переходных и аварийных режимах, включая режимы тяжелых аварий с возможным плавлением ТВС.

#### Литература

1. Айтхожин Э.С., Аринкин Ф.М., Батырбеков Г. А. и др. Реакторные комплексы ИГР, «Байкал-1», ВВР-К и перспективы развития на их базе фундаментальных и прикладных исследований: Препринт НЯЦ РК – 00-12. – Курчатов, 2000. – 75 с.
2. Briesmeister J.F., et al. MCNP – a general Monte-Carlo Code for neutron and photon Transport. – Los Alamos, 1997. – LA-7396M.
3. Котов В.М., Прозорова И.В., Райханов Н.А. “О модернизации топлива реактора ИВГ1” вестник НЯЦ, выпуск 3, сентябрь 2005 г
4. Федик И.И., Денискин В.П., Пономарев-Степной Н.Н. и др. Новое поколение твэлов на основе микро топлива для ВВЭР // Атомная энергия. – 2004. – № 4. – С. 276–285.
5. Черников А.С., Пермяков Л.Н., Федик И.И., Гаврилин С.С., Курбаков С.Д. Твэлы на основе сферических частиц с защитным покрытием для реакторов повышенной безопасности. Атомная энергия. Т.87, вып. 6, декабрь 1999 с. 451-462.

### КОНЦЕПЦИЯ ПОВЫШЕНИЯ РЕСУРСНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК МАТЕРИАЛА ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ БЫСТРОГО РЕАКТОРА НА ОСНОВЕ ДИФФУЗИОННЫХ КРИТЕРИЕВ

\*Короткий А.И., \*\*Колосков В.М., \*Субботин Ю.Н., \*Черных Н.И.  
 \*Институт Математики и механики УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия.  
 \*\*Уральский Федеральный Университет, г. Екатеринбург, Россия.

Радиационная стойкость материала оболочки твэлов быстрого реактора (БР) определяет условия безопасной эксплуатации активной зоны реактора и уровень предельного выгорания топлива. Степень выгорания ядерного топлива основной показатель экономической эффективности АЭС и уже в ближайшей перспективе, для

конкурентного развития направления БР, требуется обеспечить выгорание по делящимся атомам ~14%. Для материала оболочек твэлов БР этому пределу соответствует дозовый интервал ~ (110 ÷ 120) сна. При этом материал должен сохранить приемлемые для эксплуатации механические свойства и формоизменение твэла не должно превосходить заданных пределов.

Достижение этого предела дозы требует развития новых подходов для разработки конструкционных материалов. Существующие принципы разработки материалов оболочек твэлов оказались не эффективны для дозового интервала более 90 сна [1], [2]. Мы полагаем, что имеет место системный кризис: физические принципы описания эволюции материалов при облучении исторически сформированы на основе экспериментов при малых дозах облучения и перенесены на описание больших доз [1], [3], [4]. Корректность этого переноса спорна. Но и опытно-промышленный путь решения данной проблемы, на примере БН-600, экономически неоправдан. Поэтому было предпринято несколько попыток создания моделей структурной и фазовой эволюции материала при радиационном воздействии на основе описания баланса точечных дефектов в материале [3], [4], [5], [6]. К сожалению, эти модели содержат параметры рекомбинации и диффузионные константы, которые не имеют надежной методики определения. Стимулированные радиационным облучением концентрационные, фазовые и структурные изменения материала в процессе облучения обесценивают такие расчеты, т.к. предугадать значения и характер изменений констант рекомбинации и параметров стоков непреодолимая задача. В дополнение при описании, как правило, фиксируются диффузионные параметры среды, а это еще более отдаляет полученные результаты от реальных условий. Тем не менее, проделанная работа крайне полезна с точки зрения развития физических представлений, определения соотношений между параметрами и влияния диффузионных и структурных характеристик материала на скорость процессов [3], [5].

Создание модельного описания эволюции свойств и оценки ресурсных возможностей материала оболочек твэлов БР вновь актуальная задача атомной энергетики. Принимая во внимание значительное время эксплуатации тепловыделяющей сборки (ТВС) и различие температурных режимов, требуется особая тщательность при выборе принципов описания. Введение в основу модели приближенных выражений, или исключение из внимания пространственной структуры диффузионной среды, может привести к значительному отклонению стационарных решений от реального поведения материала при длительном радиационном воздействии. А именно стационарные решения могут служить основой для оценки ресурсных возможностей материала [7]. Первичным кластером для построения модели необходимо брать зерно поликристаллического материала оболочки твэла. Модели, использующие представление об однородной бесконечной среде или регулярной решетке микрокластеров [3], [5] в принципе не могут дать приемлемого описания концентрационной и структурной эволюции материала на больших временах. Хотя, ряд новых физических аспектов в рамках этих моделей были выявлены [3], [5].

Общепринятое представление о случайном характере распределения стоков неравновесных точечных дефектов и их равнозначности при эволюции материала при облучении ошибочно. На инкубационной стадии преимущественно работают внутренние дислокационные стоки в объеме зерен, а уже на линейной стадии распухания основным стоком становятся границы зерен (ГЗ) и характер диффузионных потоков становится направленным. На развитой стадии распухания структура вакансионных пор становится упорядоченной и ГЗ приобретает свойства преференсного стока для неравновесных собственных межузельных атомов, а поры в объеме зерна - для вакансий. Фактически происходит разделение потоков неравновесных вакансий и межузельных атомов, которые оседают на различных стоках. Этот этап эволюции сопровождается микроструктурными изменениями в ГЗ, которые усиливают неравновесные вакансионные потоки к развитым порам за счет взаимодействия дисклинационных дефектов. Этот «экстра» поток вакансий существенно увеличивает скорость роста пор в объеме зерен, что и приводит к значительному возрастанию скорости распухания.

Основными по длительности являются инкубационный и линейный этапы распухания и основным механизмом на этом этапе, приводящим к деградации сопротивляемости материала к радиационному воздействию, является концентрационные изменения в кристалле вследствие направленного потока неравновесных точечных дефектов к структурным стокам и различия диффузионной подвижности атомов базовых компонент сплава. Концентрационное перераспределение, вызванное направленным диффузионным потоком неравновесных точечных дефектов к стокам, удаляет концентрационный состав части объема зерна от состава минимума распухания, который определен в данном классе сталей. Базовая концентрационная композиция материала будет более устойчива к радиационному воздействию, если влияние обратного эффекта Киркендалла будет минимизировано.

Мы полагаем, что для повышения предела радиационной стойкости материалов оболочек твэлов выше дозовой нагрузки 110 сна необходимо, прежде всего, подавление обратного эффекта Киркендалла. Покажем один из способов достижения этой цели.

#### **Описание модели**

Рассмотрим обобщенную одномерную модель эволюции концентрационного состава внутри зерна поликристаллического материала, Рис.1.

На левой границе (центр зерна) примем отсутствие градиентов по концентрации неравновесных точечных дефектов и базовых атомов материала и считаем справедливым условие сохранения вещества в диффузионном континууме. На правой границе (сток бесконечной мощности) введем ограничение по скорости рекомбинации неравновесных точечных дефектов вакансий и межузельных атомов.

Уравнение диффузии для вакансий можно записать в виде:

$$\frac{\partial C_V(x,t)}{\partial t} = D_V \nabla C_V(x,t) + g, \quad (1)$$

Для стока ( $x = L$ ) запишем граничные условия для потока и концентрации. Для этого введем константу рекомбинации  $k_V$  [8]:

$$-D_V \frac{dC_V}{dx} = gL,$$

$$D_V C_V (k_V)^2 = gL.$$

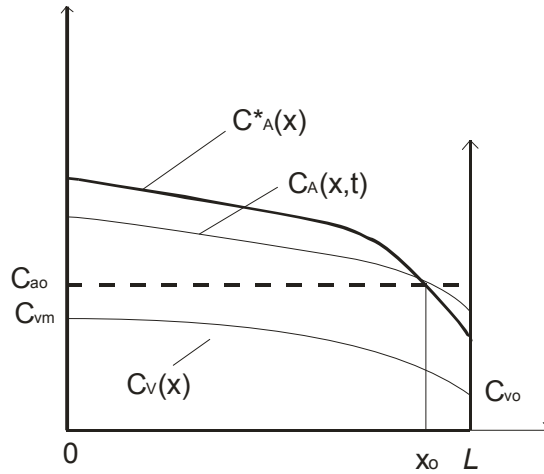


Рис.1. Модельная схема «однородно распределенный источник — диффузионный континуум — сток».

Примем условие квазистатичности профиля концентраций вакансий и постоянства коэффициента диффузии вакансий. Стационарное распределение вакансий на интервале  $(0 \div L)$ :

$$C_V(x) = -D_V g \frac{x^2}{2} + \frac{g}{D_V} \left[ \frac{L^2}{2} + \frac{L}{(k_V)^2} \right].$$

Представим стационарный профиль концентрации вакансий в виде:

$$C_V(x) = -\frac{1}{2} D_V g (x^2 - V) \quad \text{где:}$$

$$V = L^2 + \frac{2L}{(k_V)^2}.$$

Оценка времени установления стационарного профиля концентраций вакансий:

$$t^* = -\frac{L^2}{4D_V} \ln \varepsilon,$$

где  $\varepsilon < 1$  - степень достижения стационарного состояния.

Для концентрации неравновесных собственных межузельных атомов справедлив аналогичный подход.

Описание эволюции концентрационного состава построим на основе модели дырочного газа, предложенной К.П. Гуровым [9]. Опираясь на формализм введения конвективной скорости течения материала при направленных потоках точечных дефектов можно получить общее выражения для потока компонента  $A$  бинарного сплава [7]:

$$J_A(x,t) = -a^2(1 + \eta C_A C_B) C_V \nabla C_A - b^2 C_A C_B - C_A \sum_{i=A,B} J_{im} \quad (2)$$

Где:

$$a^2 = \frac{\omega'_A \omega'_B}{D_V}, \quad b^2 = \frac{(\omega'_A - \omega'_B) J_V}{D_V}, \quad D_V = C_A \omega'_A + C_B \omega'_B.$$

$C_A, C_B$  - концентрации компонента  $A$  и  $B$  в диффузионной зоне;

$\omega'_A, \omega'_B$  - диффузионная подвижность атомов сорта  $A$  и  $B$  при самодиффузии;

$C_V$  и  $D_V$  - концентрация и коэффициент диффузии вакансий;

$\sum_{i=A,B} J_{im}$  - суммарный поток межузельных атомов к стоку;

$$\eta = \frac{1}{RT} \left( \frac{\partial Q_B^m}{\partial C_A} - \frac{\partial Q_A^m}{\partial C_A} \right) \text{- параметр термодинамической активности атомов сорта } A;$$

$Q_A^m, Q_B^m$  - энергии активации миграции атомов сорта  $A$  и  $B$  при самодиффузии;

$J_V$  - диффузионный поток вакансий.

В объеме зерна концентрационные перераспределения базовых примесей формирует преимущественно поток вакансий. Потоки межузельных атомов практически не вносят вклада в перераспределение концентраций в объеме зерен, но изменяют концентрационный состав на границах зерен.

Поэтому, ограничим анализ концентрационного поля в рассматриваемом диффузионном континууме анализом составляющей потока по вакансиям. Исключим из анализа последний член в уравнении (2). Для потока вакансий справедливы соотношения:

$$J_A + J_B + J_V = 0, \text{ и } C_A + C_B = 1.$$

Как мы отмечали, основным механизмом перераспределения атомов в объеме зерен является обратный эффект Киркендалла. Проведем анализ концентрационных изменений, приняв поток вакансий стационарным.

Стационарное распределение профиля концентраций компонента  $A$  на участке  $[0 \div L]$  (получено разложением аналитически строгого решения в ряд Тейлора вблизи  $C_A = 0,5$ , а  $D_V$  и  $\eta$  приняты const):

$$C_A^*(x) = C_{A_0} - \frac{(\omega_A' - \omega_B') D_V}{\omega_A' \omega_B'} \frac{D_V}{\eta} \left\{ \ln \left[ \frac{x^2 + (L^2 + \frac{2L}{k_V^2})}{2(L^2 + \frac{L}{k_V^2})} \right] - 2 \left[ \sqrt{(L^2 + \frac{2L}{k_V^2})} \frac{1}{L} \operatorname{arctg} \left( \frac{L}{\sqrt{(L^2 + \frac{2L}{k_V^2})}} \right) - 1 \right] \right\}. \quad (3)$$

Условие сохранения исходного состава  $C_{A_0}$  (и тем самым исходных свойств) определяется равенством диффузионных подвижностей атомов  $\omega_A' = \omega_B'$  компонент сплава. При построении модели мы опирались на константы самодиффузии и, следовательно, стабильность сплава достигается при одинаковых энергиях миграции компонент. Это и есть условие подавления обратного эффекта Киркендалла. Это вывод находит практическое подтверждение [10], [11].

Достижение стационарного состояния по концентрационным распределениям означает отсутствие перестроек в решетке в объеме зерна. Генерируемые точечные дефекты усваиваются в этом случае преимущественно на ближайших собственных кластерах (вакансии) или границах зерен (межузельные атомы). Это приводит к неконсервативному движению границ зерен и появлению в ансамбле зерен дисклинационных диполей способных к генерации неравновесных вакансий и формированию трансграничных диффузионных потоков [10]. Определение времени достижения стационарного состояния важный параметр модели и количественно, по нашему мнению [7], может быть использован для оценки ресурса материала. Определение этого параметра выполним, исследуя сходимость квадратичной нормы, полученной из нестационарной задачи:

$$\frac{d \|Z(t, \square)\|^2}{dt} \leq [-2a^2 C_{V \min} + b^2 (\frac{\eta_0 C_{V \max}}{2 C_{V \min}} + 2)] \frac{L}{2} \int_0^L \left( \frac{\partial z(t, x)}{\partial x} \right)^2 dx.$$

$$z(t, x) = C_A(x, t) - C_A^*(x).$$

Исходя из оценки соотношений членов в квадратных скобках - первый член преобладает, и неравенства Пуанкаре получим:

$$\frac{d \|Z(t, \square)\|^2}{dt} \leq -a^2 C_{V \min} \frac{2}{L^2} \int_0^L z(t, x)^2 dx.$$

Из неравенства Гронуолла вытекает оценка:

$$\|Z(t, \square)\|^2 \leq \|Z(0, \square)\|^2 \cdot \exp(-\gamma t),$$

где:

$$\gamma = a^2 C_{V \min} \frac{2}{L^2}.$$

$\|Z(0, \square)\|^2$  - норма в начальный момент времени.

Обозначим близость квадратичной нормы  $\|Z(t, \square)\|^2$  к стационарному состоянию -  $\varepsilon$ .

$$\exp(-\gamma t^*) = \varepsilon.$$

Нижняя оценка времени достижения этого состояния:  $t^* = \frac{-\ln \varepsilon}{\gamma},$

пусть  $\varepsilon = 0.1$ , тогда: 
$$t^* = \frac{L^2}{2a^2 C_{V \min}} \ln 10.$$

Минимум концентрации вакансий достигается на стоке:  $C_{V \min} = C_V(L) = \frac{gL}{D_V k_V^2}.$

Выражение для  $t^*$  преобразуем к виду: 
$$t^* \approx \frac{Lk_V^2}{\omega_A' g}.$$

При выводе учтено, что для оптимального состава выполняется соотношение:  $\omega_A' = \omega_B'.$  Для достижения большего ресурса необходимо повышать константу рекомбинации стока и уменьшать диффузионную миграционную подвижность атомов сплава и увеличивать размер зерен.

В предложенной модели сознательно заложены характеристики самодиффузии, которые для перспективных композиций можно определить, следуя методическому плану [12]. В 70-х годах вопрос корреляции диффузионных характеристик материала и распухания обсуждался в [11]. Для анализа экспериментальных результатов в этой работе были использованы значения парциальных коэффициентов диффузии Ni и Fe в композиции  $Fe_{0.81-x}Cr_{0.19}Ni_x$ , а не зависимости энергий активации диффузии базовых компонент от концентрации никеля. Поэтому заключение [11], на первый взгляд, противоречит нашей концепции. Однако сплав PE16 с малой распухаемостью — это система с компенсированными энергиями активации самодиффузии, соответственно близкими энергиями миграции самодиффузии хрома и никеля и «быстрым» атомом растворителя железа [10], [12].

Исследования поддержаны Отделением математики РАН и Президиумом УрО РАН.

#### Литература

1. Зеленский В.Ф., Неклюдов И.М., Черняева Т.П. Радиационные дефекты и распухание металлов. «Наукова думка». 1988. 294с.
2. А.М. Паршин, А.Н. Тихонов, Г.Г. Бондаренко, Н. Б. Кириллов. Радиационная повреждаемость и свойства сплавов. «Политехника». С.-Петербург, 1995, 301с.
3. Слезов, В.В. Эволюция микроструктуры в облучаемых материалах / В.В. Слезов, А.В. Субботин, О.А. Осмаев // Физика твердого тела - 2005. - Т. 47, Вып. 3. - С. 463 – 468.
4. Субботин А.В. Кинетика вакансионной пористости металлов при высоких дозах облучения быстрыми нейтронами. Атомная энергия. Т.43, Вып. 2, 1977, с.104-105.
5. Орлов, А.Н. Физические аспекты ослабления радиационного распухания конструкционных сплавов. А.М. Паршин, Ю.В. Трушин // Журнал технической физики—1983. — Т.53, вып.12.— С. 2367 – 2372.
6. Слезов, В.В. Диффузионная скорость роста макродефектов в ансамблях. // Физика твердого тела - 1989. - Т. 31, Вып. 8. — С. 20 – 30.
7. Короткий А.И., Колосков В.М., Субботин Ю.Н., Черных Н.И., Гапонцев В.Л., Временная эволюция поля концентраций и структуры материала оболочки твэла быстрого реактора на инкубационной стадии. Труды седьмой международной конференции «Ядерная и радиационная физика» 8-11 сентября 2009 г. Алматы, Казахстан, с. 172-176.
8. Трушин, Ю.В. Радиационные процессы в многокомпонентных системах. Теория и компьютерное моделирование. С.- Петербург: 2002. — 383 с.
9. Гуров, К.П. К теории диффузионной подвижности и электропереноса в металлах и металлических твердых растворах / К.П. Гуров // Физика металлов и металловедение. — 1961. — Т. 11, Вып. 4. — С. 496–506.
10. Концентрационные и структурные превращения в аустенитных и хромоникелевых сплавах на основе железа при интенсивной пластической деформации / В.М Колосков [и др.] // Физическая мезомеханика. — 2006. — Т. 9, № 5. — С. 97–105.
11. Venker, H. Relation between partial diffusion coefficients in alloys and their swelling behaviour under fast neutron irradiation / H. Venker, K. Ehrlich // J. Nucl. Mater. — 1976. — Vol. 60. — P. 347–349.
12. Rothman, S.J. Self-diffusion in austenitic Fe-Cr-Ni alloys / S.J. Rothman, L.J. Nowicki, G.E. Murch // J. Phys. F: Metal Phys. — 1980. — Vol. 10 — P. 383–398.

УДК 620.178.1: 621.039.564.5

#### МЕТОДИКИ ПОСЛЕРЕАКТОРНОГО ИССЛЕДОВАНИЯ ТВЭЛов ЯЭДУ

Дерявко И.И.

*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

#### Введение

Исследования безоболочковых стержневых карбидных и карбидографитовых твэлов, испытанных в реакторах ИВГ.1 и РА, являлись заключительной частью отработки конструкции и материального состава таких твэлов применительно к условиям их эксплуатации в реакторе трехрежимной установки ЯЭДУ на двигательном и



энергетических режимах. В этих исследованиях оценивалось общее состояние облученных твэлов и определялись их основные параметры. В частности, при оценке общего состояния твэлов фиксировалось наличие продольных закруток пучков твэлов в нагревных секциях (НС), а также искривлений и поверхностных трещин у топливных стержней, а при изучении основных параметров облученных твэлов определялись величины и знаки изменений таких характеристик их материала, как микротвердость  $HV$  и период решетки  $a_0$ .

В ходе длительных исследований большого количества твэлов (каждые отдельные технологические каналы или ресурсные ампулы содержали от ~900 до ~3000 твэлов) постоянно возникала необходимость в использовании специальных методик, дополняющих стандартные и позволяющих сократить длительность выполнения исследований. В связи с этим были разработаны и использованы в работе приведенные ниже экспрессные методики для оценки угла закрутки пучка твэлов в НС, обнаружения искривлений и поверхностных трещин у твэлов, определения радиационного распухания твэлов и измерения микротвердости материала твэлов.

**Оценка угла закрутки пучка твэлов**

В стандартной методике угол продольной осевой закрутки пучка твэлов в каждой конкретной НС оценивался по тому внешнему виду секции внутри горизонтально расположенной обоймы, который эта секция приобретает после удаления из нее верхней половины пучка твэлов (рис. 1).

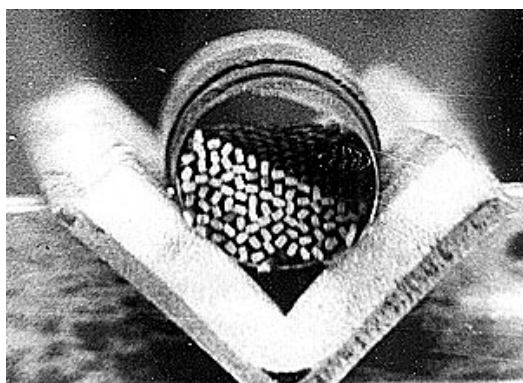


Рис. 1. Внешний вид половины пучка твэлов в НС после испытаний в канале КЭТ реактора ИВГ. 1

Поэлементное удаление половины стержней из НС с помощью манипуляторов в условиях горячей камеры являлось длительным процессом. Поэтому во всех случаях, когда по условиям исследования твэлов данной НС поэлементная разделка пучка твэлов не предусматривалась, но требовалась оценка ее угла закрутки, использовалась экспрессная методика, основанная на частичном выдвигении диаметрального ряда твэлов калиброванным шаблоном (пластиной 2-миллиметровой толщины). Если шаблоном выдвинуть на 2-3 мм горизонтально ориентированный диаметральный ряд твэлов, то на противоположном торце НС этот ряд окажется расположенным под искомым углом к горизонтали.

**Обнаружение искривлений твэлов**

Наличие значительных искривлений (пластических деформаций) у твэлов наиболее высокотемпературных НС проточных технологических каналов определялось визуальным способом; при этом фиксировался характер искривлений (дугообразный, спиралевидный), а также выполнялся грубый замер изгиба стержня (замер стрелы прогиба) в случае дугообразной формы искривления. Обнаружение незначительных (не фиксирующихся визуально) искривлений у твэлов низкотемпературных НС проточных каналов или беспроточных ампул, т.е. у таких твэлов, как на рис. 2а, проводилось только в отдельных случаях специально отобранных стержней. Такое ограничение было вызвано длительностью процедуры определения стрелы прогиба у облученных твэлов с помощью измерительного микроскопа. В связи с этим взамен стандартной методики обнаружения малой кривизны твэла с помощью микроскопа была разработана экспрессная методика, использующая возможности приспособления КС (рис. 2б).

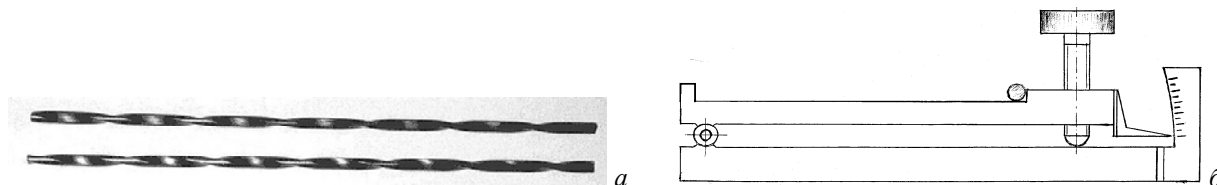


Рис. 2. Внешний вид твэлов (а) после испытаний в ампулах реактора РА при  $T_{обл}$  ниже 1700 К и схема конструкции приспособления КС (б)

Данное приспособление позволяло экспрессно обнаруживать и количественно оценивать степень кривизны твэла по максимальному углу наклона платформы, при котором твэл еще не скатывался с платформы. Перед измерениями углов скатывания твэлов проводилась юстировка приспособления: подвижная платформа выставлялась с помощью уровней в горизонтальное положение, а указательная стрелка – в нулевое положение. Качество юстировки приспособления КС определялось по величине угла скатывания эталонного стержня, которым являлась 100-миллиметровая концевая мера (закаленный стальной стержень круглого сечения диаметром 2,2 мм): угол скатывания эталона составлял менее  $0,5^\circ$ .

Следует отметить, что эту методику можно было использовать и для измерения большой кривизны стержней, причем вплоть до такой большой, когда скатывание твэлов с платформы сменяется их соскальзыванием.

### Обнаружение поверхностных трещин

Стандартная методика обнаружения поверхностных трещин в облученных твэлах предполагает использование таких длительных и кропотливых процедур выявления трещин с помощью красок, как пропитка поверхности стержня красной проникающей краской, просушка стержня, удаление (смыть) с его поверхности красной краски без удаления ее из трещин, покрытие поверхности стержня белым красителем, вытягивающим на поверхность часть красной краски. Методика предполагает к тому же наличие у оператора вполне определенных навыков по дозировке количества красок в соответствии с формой твэлов и глубиной трещин. Поэтому для упрощения и повышения экспрессности процедур обнаружения трещин была разработана методика, основанная на измерении статического модуля упругости твэла  $E_{ст}$ , а также погонного электросопротивления твэла  $R$ . При этом основной процедурой в данной методике являлась процедура измерения более чувствительной характеристики, т.е. модуля упругости  $E_{ст}$ , поскольку при любом характере появляющихся поверхностных трещин (небольшое количество единичных трещин, большое количество трещин, густая сетка трещин) наблюдается значительное, на 15-45 %, уменьшение  $E_{ст}$ . А процедура измерения погонного электросопротивления  $R$  использовалась в этой методике в основном только для случая обнаружения небольшого количества единичных трещин, далеко отстоящих друг от друга.

Для реализации методики в части измерения модуля  $E_{ст}$  достаточно было измерить прирост стрелы прогиба твэла  $\Delta f_m$ , нагруженного по трехточечной схеме (рис. 3), при увеличении нагрузки  $F$  на величину  $\Delta F$ , равную 0,981 Н, посредством добавления к 20-граммовому грузу  $m$  (грузу предварительной нагрузки) основного груза  $M$  массой 100 г. В приспособлении оба груза подвешивались на одной нити (на конце нити груз  $M$ , а в середине – груз  $m$ ). Горизонтально встроенный в приспособление микроскоп с окулярной измерительной насадкой МОВ-1-15 позволял проводить измерение вертикального перемещения выбранной точки на поверхности твэла в пределах 200 мкм с точностью  $\pm 2$  мкм. Значение модуля  $E_{ст}$  (в ГПа) для каждого твэла можно было найти по формуле

$$E_{ст} = 34,2 / \Delta f_m$$

в которой коэффициент 34,2 ГПа·мм был вычислен для следующего случая: изгиб на базе 93 мм, диаметр описанной окружности твэла 2,2 мм, ширина лопасти 1,24 мм, шаг закрутки 30 мм. Однако в процессе работы по этой методике значения модулей  $E_{ст}$  не вычислялись, поскольку в целях ускорения процедуры обнаружения трещин использовались только измеренные значения прогибов  $\Delta f_m$  у облученных твэлов и твэлов-свидетелей, т.к. сопоставление этих значений с очевидностью указывало на наличие или отсутствие трещин в облученных твэлах.

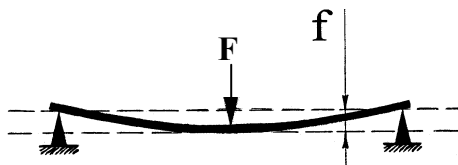


Рис. 3. Схема нагружения твэла изгибом на базе 93 мм для определения модуля упругости

Методика экспрессного обнаружения трещин в твэлах путем измерения модулей  $E_{ст}$  обладала высокой чувствительностью во всех тех случаях, когда в исследованиях участвовали твэлы-свидетели, а характер повреждения поверхностей облученных твэлов представлял или большое количество трещин, или густую сетку трещин. В случае небольшого количества единичных трещин, далеко отстоящих друг от друга, чувствительность методики значительным образом снижалась. В этом случае процедуру обнаружения трещин необходимо было дополнять измерениями погонного электросопротивления  $R_i$  на различных участках длины твэла путем дискретного сканирования вдоль его длины.

Обнаружение единичных поверхностных трещин в твэле проводилось в приспособлении для четырехзондового потенциометрического измерения  $R_i$  на выбранном участке твэла длиной  $L_B$ , равной 30,3 мм (рис. 4). Значение  $R_i$  на этом участке можно было вычислить по формуле

$$R_i = R_o (\Delta U_B)_i / [(\Delta U_o)_i L_B],$$

где  $R_o$  – электросопротивление образцовой катушки;  $(\Delta U_B)_i$  – падение напряжения на потенциометрируемом участке твэла длиной  $L_B$  (база  $L_B$  – расстояние между потенциометрическими ножами);  $(\Delta U_o)_i$  – падение напряжения на образцовой катушке.

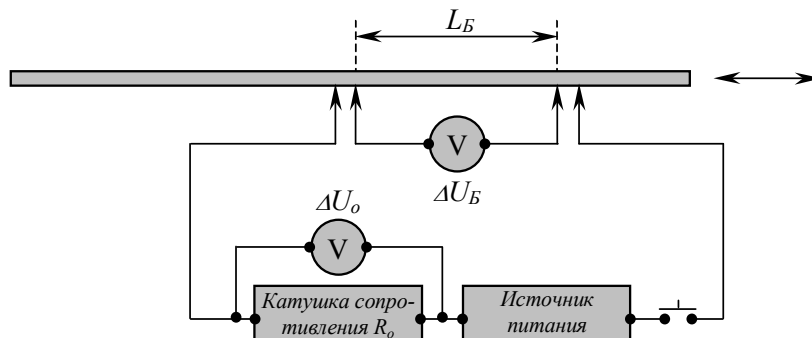


Рис.4. Схема приспособления для измерения погонного электросопротивления твэла

Обычно вычисление значений  $R_i$  для каждого из потенциметрируемых участков в данной методике не проводилось, т.к. с целью повышения экспрессности достаточно было вместо величины  $R_i$  использовать пропорциональную ей величину  $(\Delta U_B)_i$ , поскольку значения  $(\Delta U_0)_i$  для данного твэла являются практически постоянной величиной. Из сказанного следует, что процедура обнаружения единичных поверхностных трещин в твэле сводилась к процедуре обнаружения подъемов значений  $(\Delta U_B)_i$  в отдельных участках потенциметрируемого твэла при его дискретном сканировании от одного конца до другого.

Таким образом, совместное использование измерений  $E_{ст}$  и  $R_i$  позволяло повысить чувствительность методики обнаружения поверхностных трещин в твэле и в случае единичных трещин, далеко отстоящих друг от друга. (Такой тип трещин был выявлен [1] в твэлах, прошедших испытания, например, в каналах КЭТ реактора ИВГ.1 на энергетическом режиме большой мощности ЯЭДУ.)

#### **Определение распухания твэлов**

Стандартная методика рентгенографического определения твердого распухания твэлов под облучением сводилась к измерению периодов решетки у материала твэлов до  $(a_0)$  и после  $(a_0')$  реакторных испытаний. Дифрактометрические измерения  $a_0$  и  $a_0'$  выполнялись на порошковых образцах из облученных твэлов и необлученных твэлов-свидетелей. Для повышения точности определения величины и знака изменения периода решетки  $\Delta a_0/a_0$ , вызванного облучением, измерения периодов и у облученных, и у необлученных образцов выполнялись прецизионным методом [2, 3] по нескольким задним дифракционным линиям с использованием спрямляющей экстраполяционной функции  $\varphi(\theta) = \cos^2\theta$ , где  $\theta$  – угол дифракции. Получение экстраполированного к углу  $\theta = 90^\circ$  значения периода решетки было необходимо для устранения различий в геометрии рентгено съемки облученного образца и образца-свидетеля. Значения периодов для каждой из линий вычислялись по формуле

$$a_0 = \lambda(H^2 + K^2 + L^2)^{0,5} / (2\sin\theta),$$

где  $\lambda$  – длина волны рентгеновского излучения; H, K и L – индексы Миллера конкретной дифракционной линии НКЛ. Обработка результатов промежуточных измерений  $a_0$  по нескольким линиям для нахождения экстраполированного (точного) значения  $(a_0)_3$  выполнялась методом наименьших квадратов [4]. Погрешность определения периодов решетки у образцов-свидетелей составляла примерно  $\pm 0,002\%$ , а у облученных образцов была выше и в предельном случае ухудшения качества линий достигала  $\pm 0,02\%$ .

Отсюда можно видеть, что стандартная процедура раздельного определения периодов  $(a_0)_3$  и  $(a_0')_3$  для нахождения величины и знака радиационного изменения периода решетки  $\Delta(a_0)_3/(a_0)_3$  весьма длительна и трудоемка. Поэтому во всех случаях, когда периоды решетки у облученных образцов и их образцов-свидетелей различались более чем на 0,001 нм, использовалась экспрессная методика непосредственного определения величины и знака изменения периода решетки  $\Delta a_0/a_0$ , устраняющая этапы промежуточного раздельного определения периодов  $a_0'$  и  $a_0$  (и тем более  $(a_0')_3$  и  $(a_0)_3$ ).

По этой методике равные объемы подготовленных порошков облученного и необлученного материала перемешивались, и из полученной смеси порошков изготавливался один общий образец для непосредственного измерения  $(a_0' - a_0)/a_0$ . После дифрактометрической дискретной записи одной из  $K_\beta$ -линий в области малых, средних или больших углов  $\theta$  на «дифрактограмме» оказывались зафиксированными две близко расположенные  $K_\beta$ -линии от облученного и необлученного материала, имеющие одинаковые индексы Миллера. Поэтому вычисление относительного изменения периода решетки  $\Delta a_0/a_0$  в соответствии с уравнением Вульфа-Брегга можно было проводить по формуле

$$\Delta a_0/a_0 = (a_0' - a_0)/a_0 = (\sin\theta'/\sin\theta) - 1,$$

где  $\theta$  и  $\theta'$  – углы дифракции соответственно у необлученного и облученного материала. Поскольку в разработанной методике геометрия рентгено съемки для порошков облученного и необлученного материалов одна и та же (см. на рис. 5 одинаковые наклоны пунктирных линий), величина радиационного изменения периода  $\Delta a_0/a_0 = a_0' - a_0$  будет одинаковой при любом угле дифракции  $K_\beta$ -линии и к тому же равной величине  $(\Delta a_0)_3 = (a_0')_3 - (a_0)_3$ .

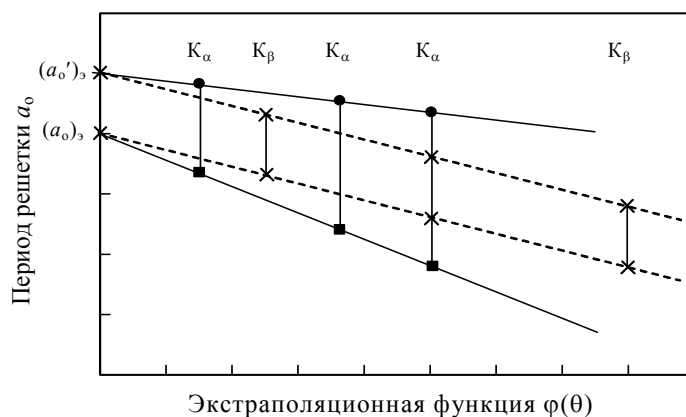


Рис. 5. Графическая иллюстрация к методикам прецизионного (■ – ●) и экспрессного (× – ×) определения радиационного изменения периода  $\Delta a_0/a_0 = \Delta(a_0)_3/(a_0)_3$

Следует отметить, что в отдельных случаях, когда значения  $a_0$  и  $a_0'$  различались более чем на 0,0015 нм, вместо  $K_\beta$ -линии использовалась одна из  $K_\alpha$ -линий в области малых или средних углов  $\theta$ . При этом в обоих вариантах методики предварительным и обязательным элементом определения  $\Delta a_0/a_0$  являлось графическое (по методу Речингера [2, 5]) разделение накладывающихся друг на друга линий от облученного и необлученного материала. Любые ошибки при выполнении графического разделения этих линий заметно влияли на погрешность определения искомой величины  $\Delta a_0/a_0$ , однако при наличии возможности надежного разделения линий погрешность определения  $\Delta a_0/a_0$  в экспрессной методике была близка к погрешности определения  $\Delta(a_0)_\beta/(a_0)_\beta$  в стандартной прецизионной методике.

#### **Измерение микротвердости твэлов**

В стандартной методике измерения микротвердости материала твэлов до ( $H_V$ ) и после ( $H_V'$ ) облучения процесс измерения  $H_V$  и  $H_V'$  осуществлялся на приборе ПМТ-3 при 15-секундном нагружении индентора массой 50, 100 или 150 г, причем для каждого конкретного твэла нагрузка до и после облучения была одной и той же, так как для карбидов характерна сильная зависимость значения твердости от величины нагрузки на индентор [6]. Значение микротвердости материала твэла (в ГПа) вычислялось по формуле

$$H_V = 1,854 P/z^2,$$

где  $P$  – нагрузка на индентор, Н;  $z$  – размер диагонали отпечатка индентора, мкм. Процедура определения микротвердости твэла по Виккерсу состояла в многократном (30-50 раз) прицельном индентировании поверхности шлифа в центральные участки зерен, минуя границы, видимые поры и включения, измерении размеров  $z_i$ , пересчете  $z_i$  в значения микротвердости  $H_V$  и вычислении ее средней величины.

Поскольку такая процедура давала удовлетворительные результаты только в отдельных случаях относительно низкопористых структур у карбидных твэлов, параллельно использовалась также методика экспрессного нахождения максимального значения микротвердости  $H_V^{\max}$ . Последнее было связано с тем, что в случае высокопористых структур (а для структур, например, карбидографитовых твэлов характерной была пористость на уровне 30 %) корректное нахождение среднего значения микротвердости даже при значительном увеличении количества уколов не представлялось возможным из-за наличия подповерхностных (по отношению к поверхности шлифа) пор, а также неоднородно распределенных микропор. На рис. 6, например, показана структура, где все 16 уколов наносились в первоначально чистые даже от мелких пор зерна. Видно, что после индентирования примерно у половины отпечатков размер определяется не твердостью материала, а наличием подповерхностных пор. На это указывает и сопоставление 16 значений  $H_V$ , полученных из результатов измерений размеров отпечатков: 20,0, 18,4, 18,4, 16,9, 16,9, 16,0, 12,8, 11,2, 10,5, 9,8, 5,8, 4,9, 4,0, 1,5, 1,3 и 1,1 ГПа.

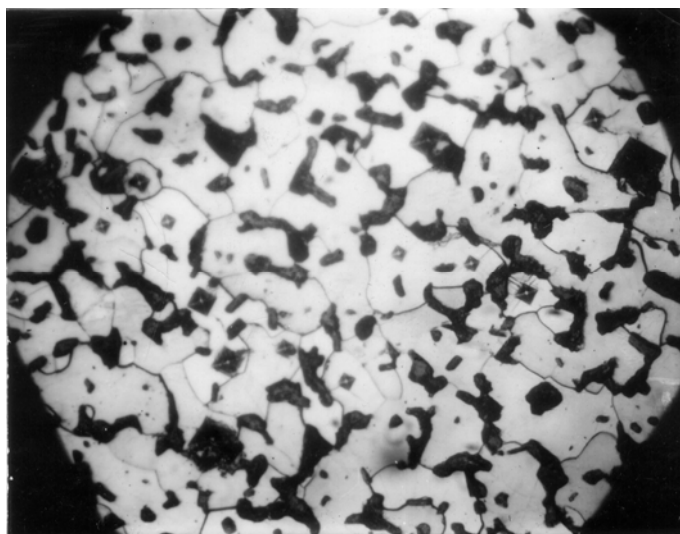


Рис. 6. Микроструктура ( $\times 200$ ) карбидографитового твэла с 16 отпечатками индентора (нагрузка 50 г)

Так как конечной целью измерений микротвердости материала твэлов являлось определение величины и знака изменения микротвердости твэлов под облучения  $(H_V' - H_V)/H_V$ , то использование  $H_V^{\max}$  вместо среднего значения  $H_V^{\text{cp}}$  вполне оправдано, поскольку величина  $\Delta H_V^{\max}/H_V^{\max}$  подобно величине  $\Delta H_V^{\text{cp}}/H_V^{\text{cp}}$  укажет на тенденцию изменения микротвердости твэла под облучением, но процедура нахождения значений  $H_V^{\max}$  и  $H_V^{\max'}$  не встречает особых методических трудностей: нахождение этих величин сводится, по сути, к отысканию (среди большого числа отпечатков с относительно небольшими размерами) отпечатка минимального размера  $z_0$  (у исходного твэла) и  $z_0'$  (у облученного). Для этого после каждого укола оценивается размер отпечатка, а измерение его проводится только в том случае, если он попадает в условный разряд отпечатков с явно малыми размерами (такие размеры заполняли бы левый угол под предполагаемой гистограммной кривой  $F_{z_0}$ , показанной на рис. 7). За искомые величины максимальной микротвердости твэла до и после облучения принимаются значения микротвердости, вычисленные из размеров минимальных отпечатков  $z_0$  и  $z_0'$ . После этого величина и знак радиационного изменения микротвердости твэла определяется непосредственно из выражения

$$\Delta H_V^{max}/H_V^{max} = (z_0/z_0')^2 - 1,$$

т.е. минуя промежуточные этапы вычисления значений  $\Delta H_V^{max}$  и  $H_V^{max}$ .

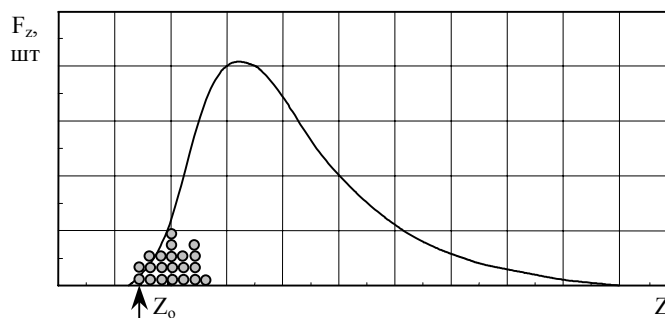


Рис. 7. Графическая иллюстрация к отысканию максимального значения микротвердости высокопористого материала твэла

Использование методики измерения максимальной микротвердости  $\Delta H_V^{max}$  не встречало никаких ограничений при исследовании как высокопористых карбидных, так и максимально высокопористых карбидографитовых твэлов. К достоинствам данной методики можно отнести также и то, что, кроме повышения экспрессности определения величины и знака изменения микротвердости материала твэла под облучением, методика остается полностью работоспособной во всех тех случаях, когда стандартная методика измерения  $H_V$  перестает быть применимой.

**Литература**

1. Дерявко И.И., Перепелкин И.Г., Пивоваров О.С., Стороженко А.Н. Исследование работоспособности стержневых карбидных твэлов на энергетическом режиме большой мощности реактора ЯЭДУ. – Вестник НЯЦ РК, вып. 4, Курчатова, НЯЦ РК, 2000, с. 122-126.
2. Русаков А.А. Рентгенография металлов. – М., Металлургия, 1977. – 480 с.
3. Уманский Я.С., Скаков Ю.А., Иванов А.Н., Расторгуев М.Н. Кристаллография, рентгенография и электронная микроскопия. – М., Металлургия, 1982. – 632 с.
4. Тейлор Д. Введение в теорию ошибок. /Пер. с англ./– М., Мир, 1985. – 431 с.
5. Тейлор А. Рентгенография металлов. /Пер. с англ./– М., Металлургия, 1965. – 438 с.
6. Milman Y.V. Physics of hardness of high-melting compounds. – In: Materials science of carbides, nitrides and borides (edited by Y.G. Gogotsi and R.A. Andrievski), Dordrecht, Kluwer Academic Publishers, 1999, series 3, vol. 68, p. 323-326.

**МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЫДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ ИЗ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ РАЗЛИЧНЫХ МАРОК**

Гордиенко Ю.Н., Кульсартов Т.В., Кенжин Е.А., Тажибаева И.Л., Барсуков Н.И., Понкратов Ю.В., Садвакасова А.О., Тулубаев Е.Ю.

*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатова, Казахстан*

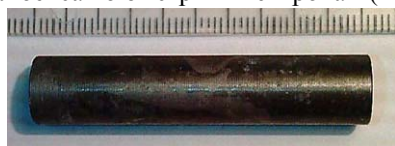
Актуальность проводимых исследований связана с необходимостью решения задач детритизации накопленных бериллиевых материалов, а так же с целью расширения представлений о механизмах процессов взаимодействия трития с бериллием, планируемом для использования в будущих ТЯР.

**1. Объект исследования**

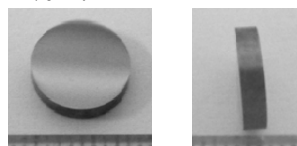
Исследования проводились с образцами бериллия облученного на реакторах БН-350 (Казахстан) и JMTR (Япония).

*Бериллий, облученный на реакторе БН-350*

Исследуемые образцы диаметром 9 мм, различной толщины (1 и 2 мм) были вырезаны из бериллий-сурьмяного источника нейтронов реактора БН-350, из спечённого дистиллированного бериллия марки ДВ-56, изготовленного на Ульяновском машиностроительном заводе (см. рисунок 1). Образцы были облучены в течение 300 эффективных суток до флюенса по быстрым нейтронам ( $E > 0,1$  МэВ) порядка  $5 \cdot 10^{21}$  н/см<sup>2</sup>.



а) – фрагмент бериллий-сурьмяного источника нейтронов реактора БН-350



б) – образец для термодесорбционных экспериментов

Рисунок 1 – Облученный бериллий марки ДВ-56

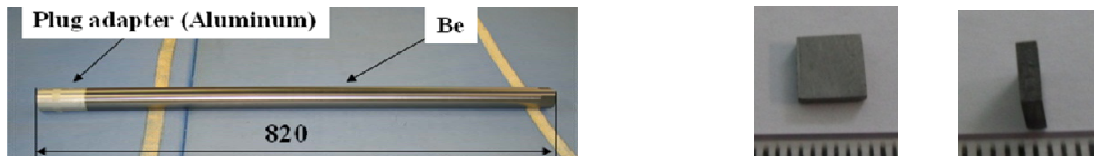
Химический состав бериллия ДВ-56 представлены в таблице 1.

Таблица 1 – Химический состав Be (ДВ-56)

Элементы	Be	Si	Fe	Al	C	BeO
Содержание, %	98,64	0,013	0,055	0,02	0,072	1,2

*Бериллий, облученный на реакторе JMTR*

Для проведения исследований по газовой выделению трития и гелия из облученного бериллия из разных участков бериллиевого стержня (отражателя), облученного на реакторе JMTR были изготовлены образцы толщиной 1,5 мм и размерами 6×6 мм (см. рисунок !!!)



а) – бериллиевый стержень Ø 30 мм и массой ≈ 0,96 кг      б) – образцы для ТДС- экспериментов

Рисунок 2 – Бериллий облученный на реакторе JMTR

Облучение проводилось в течение 7 лет (с 1968 по 1975 г.) потоком тепловых нейтронов  $\sim 8,5 \cdot 10^{13}$  н/см<sup>2</sup>с; потоком быстрых нейтронов  $\sim 7,5 \cdot 10^{12}$  н/см<sup>2</sup>с.

Химический состав бериллия облученного на реакторе JMTR представлен в таблице 2

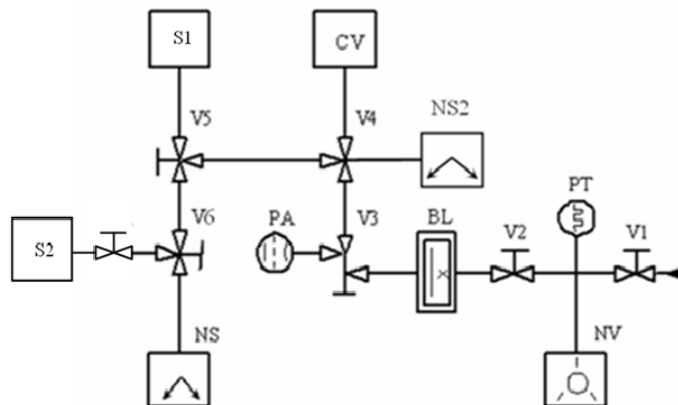
Таблица 2 – Химический состав бериллия облученного на реакторе JMTR

Элементы	Be	BeO	Fe	C	Al	Si	Mg	Ca	Cl	Ni	Сумма Mo, Cr, Mn, Li, B, Cd, Co, Pb, Ag
Содержание, %	98,0	<1,7	<0,14	<0,15	<0,10	<0,05	<0,03	<0,01	<0,005	<0,03	<0,04

## 2. Экспериментальная установка и методика проведения экспериментов

Исследования облученных бериллиевых образцов проводились на экспериментальной установке ВИКА, которая позволяет проводить ТДС-эксперименты методом температурно-программируемой десорбции в интервале температур от 20 до 1500 °С с масс-спектрометрической регистрацией выделяющихся газов. Принципиальная схема экспериментальной установки представлены на рисунке 3.

Подробное описание установки ВИКА представлена в работе [1].



PT – вакуумметр термопарный; PA – вакуумметр ионизационный; V – вакуумный вентиль; NS – магниторазрядный насос НОРД – 100; NS2 – магниторазрядный насос НОРД-250; S1 – омегатронный датчик РМО-13 масс-спектрометра ИПДО-2; S2 – квадрупольного анализатора остаточных газов (RGA-100) NV – насос НВР – 5 ДМ; BL – азотная ловушка; CV – рабочая камера.

Рисунок 3 – Принципиальная схема экспериментальной установки ВИКА

Методика проведения исследований заключалась в следующем, исследуемый образец бериллия загружался в тигель рабочей камеры экспериментальной установки рисунок 4. После этого проводилась дегазация образца при температуре примерно 150 °С в течение 4 часов при непрерывной откачке вакуумными насосами. Затем образец охлаждался до комнатной температуры и далее проводился ТДС-эксперимент. Исследуемый образец линейно нагревался до температуры  $\sim 1250$  °С, при этом на всем протяжении нагрева проводилась масс-спектрометрическая регистрация выделяющихся газов из образца с помощью квадрупольного масс-спектрометра RGA-100.



Рисунок 4 – Размещение исследуемого образца в вакуумной камере установки ВИКА

### 3. Результаты экспериментов и их анализ

За время проведения ТДС эксперимента с облученным образцом бериллия получены временные зависимости изменения парциальных давлений исследуемых газов  $H_2$ ;  $^3He$ ; НТ и  $^4He$ ;  $T_2$ ;  $H_2O$ ; НТО;  $T_2O$ ;  $CO$  и  $CO_2$  (с массовыми числами 2; 4; 6; 18; 20; 22; 28 и 44). На рисунках 5, 6 представлены характерные временные зависимости газовой выделения трития и гелия из образцов бериллия облученных на реакторах БН-350 и JMTR.

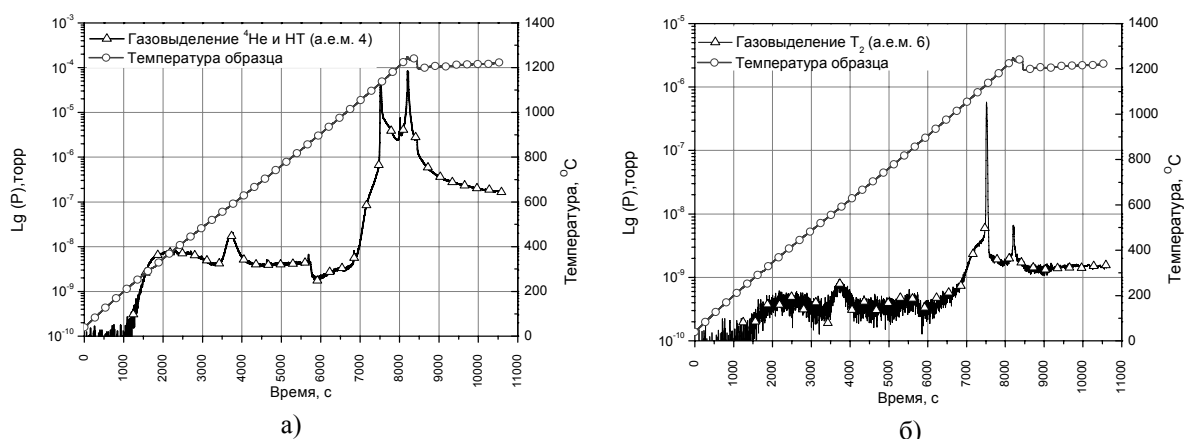


Рисунок 5 – Изменение парциального давления газов с массовыми числами: 4 – а) и 6 – б) за время проведения ТДС эксперимента с образцом бериллия облученным на реакторе БН-350

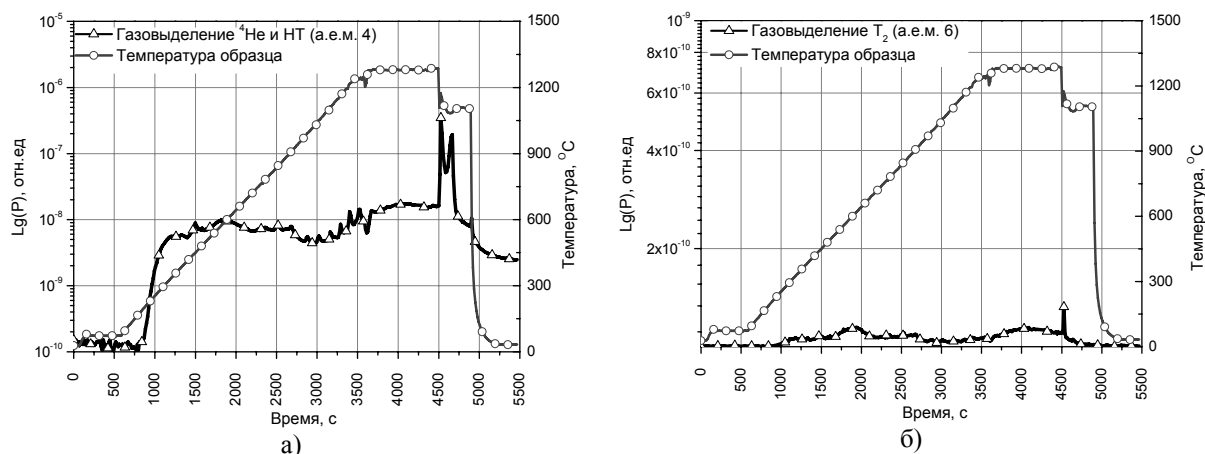


Рисунок 6 – Изменение парциального давления газов с массовыми числами: 4 – а) и 6 – б) за время проведения ТДС эксперимента с образцом бериллия облученным на реакторе JMTR

На кинетических зависимостях газовой выделения полученных в результате ТДС экспериментов с исследуемыми образцами бериллия, облученными на реакторах БН-350 и JMTR, зафиксировано, две области в которых происходит выделение трития: низкотемпературная (от 400 до 800 °C) и высокотемпературная область (1170 до 1250 °C), в последней выделение трития происходит наиболее интенсивно.

Характер выделение трития в низкотемпературной и высокотемпературной области существенно различается: высокотемпературный пик выделение более узкий и высокий и должен описываться в предположении модели десорбции одного скачка, в то время как низкотемпературный пик выделение трития можно описать в предположении диффузии в дефектных средах.

В результате проведенных ТДС экспериментов были впервые получены кинетики выделение трития с учетом его распределения по молекулам  $T_2$ , НТ, НТО,  $T_2O$ , отдельно фиксировалось выделение  $^4He$ ,  $^3He$  и  $H_2$ . Анализ

относительного вклада интегрального выделения молекул T<sub>2</sub>, HT, HTO, T<sub>2</sub>O в общее выделение трития показал, что тритий в основном выделяется в виде молекулы HT (около 60 %) и молекулы T<sub>2</sub> (около 25 %).

**4. Разработка феноменологической модели, описывающей процессы миграции гелия и трития в облученном бериллии**

*Основными процессами, определяющими взаимодействие гелия и трития с облученным бериллием являются:*

- диффузия газов в объеме зерна;
- выделение газов из объема зерна на границу;
- диффузия газов по границам зерен;
- образование пузырьков газа на границах зерен;
- захват и выделение атомов гелия и трития из пузырьков газа на границах зерен;
- диффузия пузырьков газа по границам зерен;
- взаимодействие газов с окисной пленкой ВеО на поверхности образца.

Для описания экспериментов по ТДС была выбрана модель газовыделения из бериллиевых образцов, которая принимает во внимание одновременное движение атомов газа, осаждение в пузыри и миграцию к границам зерна.

Такие процессы могут быть описаны следующей системой скоростей реакции:

$$\begin{cases} \frac{\partial c_{gr}}{\partial t} = -Kc_{gr} - Hc_{gr}, & (1) \\ \frac{\partial c_{bb}}{\partial t} = Kc_{gr} - Uc_{bb}, & (2) \\ \frac{\partial c_{bnd}}{\partial t} = Hc_{gr} + Uc_{bb}, & (3). \end{cases}$$

где  $c_{gr}$  – средняя объемная концентрация атомов газа в зерне;

$c_{bb}$  – средняя концентрация атомов газа в объеме пузырька;

$c_{bnd}$  – средняя концентрация атомов газа, вышедших на границы зерен;

Выражение (1) описывает динамическое растворение атомов газа. Концентрация газа  $c_{gr}$  при растворении уменьшается, если атомы газа, диффундирующие в решетке, удерживаются пузырями, (параметр захвата  $Kc_{gr}$ ) или если они достигают границ зерна (параметр, отвечающий за выделение на границу зерна –  $Hc_{gr}$ ). Параметр захвата учитывает дополнительный вклад в увеличение концентрации газа в пузырьках  $c_{bb}$  (2), пока другой член покидая границы зерна увеличивает количество газа на границах зерна и, следовательно, выделившегося газа  $c_{bnd}$  (3). В отсутствии соответствующей миграции пузырька к границам зерна единственным механизмом, позволяющим осевшему газу выделиться, является выход из пузырей (параметр выхода из пузырька –  $Uc_{bb}$ ).

*Диффузия, осаждение и миграция к границам зерен.* Временная константа захвата  $Kc_{gr}$  связана с вероятностью того, что атомы будут захваченными скоплением пузырьков внутри зерна:

$$Kc_{gr} = \chi k_{sc}^2 D c_{gr} = 4\pi \chi r_i N_i D c_{gr}, \quad (4)$$

где  $\chi$  – фактор захвата;

$k_{sc}$  – интенсивность стока атомов в объеме зерна;

$r_i$  – размеры пузырька;

$N_i$  – объемная концентрация пузырьков;

Внутренний фактор захвата  $\chi$  (<1) учитывает снижение эффективности пузырьков за счет недостачи необходимого числа вакансий при напряжении, вызванном дополнительным захватом атомов газа в равновесном состоянии [2].

Временная константа миграции на границы зерен  $Hc_{gr}$  связана с вероятностью того, что атомы газа, не захваченные пузырьками, достигают границы зерен:

$$Hc_{gr} = k_{sg}^2 D c_{gr} = 3 \frac{\sqrt{\chi} k_{sc}}{\lambda} D c_{gr}. \quad (5)$$

где  $k_{sg}$  – интенсивность стока на границы зерен;

$\lambda$  – длина миграции атомов по границам.

*Выделение пузырьков.* Осажденный в пузырьках газ не может выделиться при помощи диффузии по поверхности зерен, т.к. время его движения намного больше, чем продолжительность процесса. В действительности, начиная только с 1230 °С, газ, захваченный пузырьками внутри зерна, начинает выделяться посредством слияния пузырьков и их выхода. Для описания выделения газа в этом диапазоне в выражении (3) представлен член стока для учета газа в пузырьках. Временная константа для выхода пузырька:

$$U = TU_0 \exp\left(-\frac{Q'}{kT}\right), \quad (6)$$

где  $Q'$  – энергия активации деформацией.

*Основные параметры модели*

К основным параметрам модели относятся размеры исследуемых образцов; начальные концентрации атомов гелия (<sup>4</sup>He, <sup>3</sup>He) и трития (Т) в образце, которые определяются на основе интегрального выделения в экспериментах по ТДС, а также оцениваются расчетным путем, на основе данных о флюенсе облучения и времени выдержки



образцов после облучения. В число исходных данных для расчета также входят размеры зерна  $\lambda$  и размеры пузырьков, оцененные в результате микроструктурных исследований, а так же рассчитанная концентрация пузырьков  $N$  в единице объема.

**5. Результаты компьютерного моделирования**

Для описания процессов выделения  $T_2$  и  $^4He$  согласно представленной феноменологической модели была разработана программа основного алгоритма уравнений диффузии, заключающаяся в численном решении системы дифференциальных уравнений скоростей реакции (1, 2, 3) и позволяющая моделировать экспериментальные кинетики выделения газов различных масс с определением основные параметры взаимодействия газа с облученным бериллием. Используя данную модель были проанализированы смоделированные зависимости выделения трития и гелия в зависимости от изменения параметров модели, в частности были получены серии кривых газовой выделению от размера зерна, радиуса и количества гелиевых пузырьков (см рисунки ). Модель качественным образом позволяет описать наблюдаемые зависимости газовой выделению в эксперименте: первоначально наблюдается пик выделения газа при температурах около 600 – 800 °С, и дальнейший высокотемпературный пик, который превосходит низкотемпературный на несколько порядков.

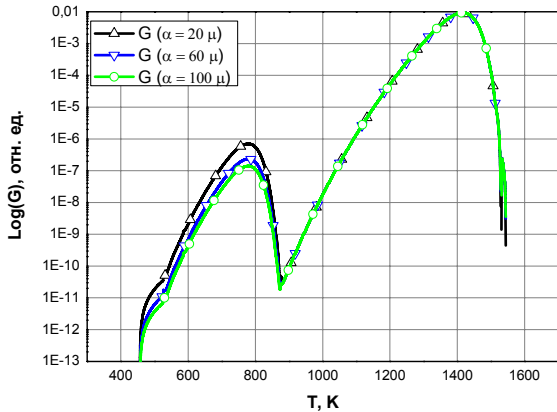


Рисунок 7 – Температурная зависимость потока газа от размера зерна  $\alpha$

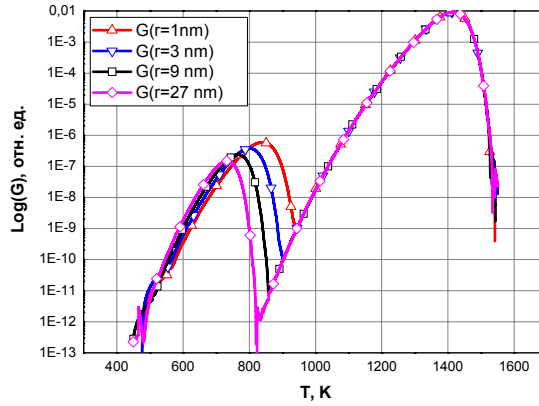


Рисунок 8 – Температурная зависимость потока газа от радиуса пузырька  $r$

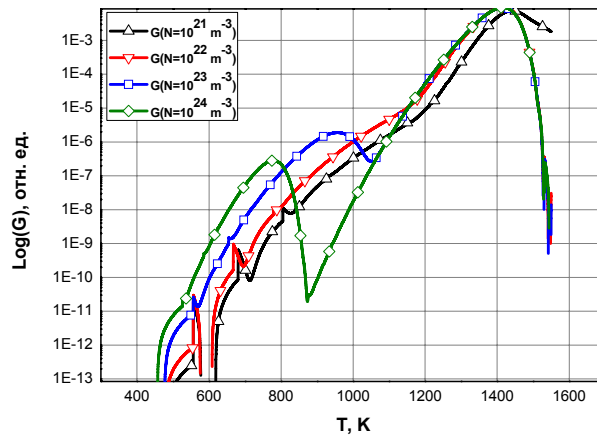


Рисунок 9 – Температурная зависимость потока газа от количества пузырьков  $N$

По полученным зависимостям были оценены начальные параметры модели, которые затем были использованы при моделировании экспериментальных кривых газовой выделению трития и гелия из облученных бериллиевых образцов.

На рисунках 10 и 11 представлены графики моделирования диффузионных пиков низкотемпературной области экспериментальных ТДС кривых выделения молекул  $T_2$  и  $^4He$  из бериллиевого образца облученного на реакторе БН-350. Как видно из графиков, смоделированные диффузионные пики повторяют форму экспериментальных кинетик выделения  $T_2$  и  $^4He$  и лежат вблизи температуры 850 К.

Моделирование экспериментальных кривых  $T_2$  и  $^4He$  позволило получить коэффициенты диффузии  $T_2$  и  $^4He$  в исследуемых образцах, а также энергии активации этих процессов:

$$D_{T_2} = 9 \cdot 10^{-2} \exp\left(-\frac{152}{RT}\right), \tag{7}$$

$$D_{^4He} = 5 \exp\left(-\frac{180}{RT}\right), \tag{8}$$

Рассчитанная погрешность результатов газовой выделению составила приблизительно 20-25%. Результаты согласуются с литературными данными других авторов [3].

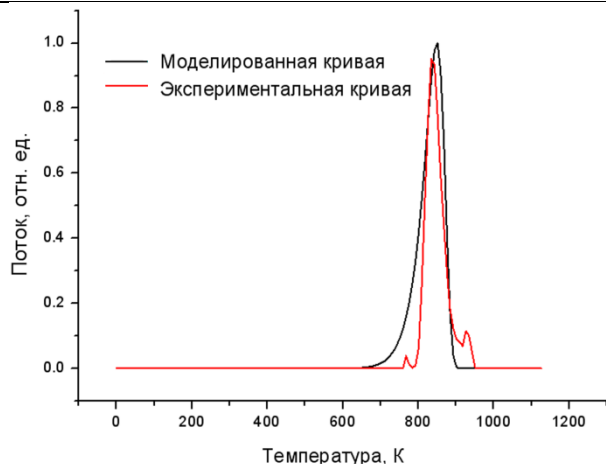


Рисунок 10 – Моделированная кривая выделения  $T_2$  из бериллиевого образца облученного на реакторе БН-350

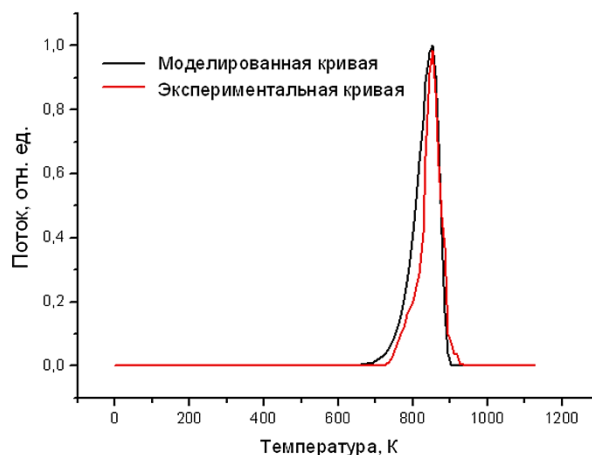


Рисунок 11 – Моделированная кривая выделения  $^4He$  из бериллиевого образца облученного на реакторе БН-350

### Заключение

В ходе работы были проведены ТДС эксперименты по газовой выделению из образцов бериллия облученного на реакторах БН-350 и JMTR, получены кинетики выделения газа из образцов в форме различных молекул; было установлено, что основные пики выделения исследуемых газов из бериллиевых образцов присутствуют в двух температурных интервалах; были определены интегральные количества  $T_2$  и  $^4He$  в образце и оценен вклад каждой тритийсодержащей молекулы в общее количество выделившегося трития. Была разработана феноменологическая модель возможного механизма процессов взаимодействия  $T_2$  и  $^4He$  с облученным бериллием, основанная на учете процессов диффузии трития в объеме и на границе зерен, а также процессов поглощения и выделения трития пузырьками гелия. На основе модели создана программа для моделирования кинетик выделения  $T_2$  и  $^4He$  из облученного бериллия, определены основные параметры выделения.

### Список использованной литературы

1. Кульсартов, Т.В. Исследование влияния реакторного излучения на взаимодействие изотопов водорода с вольфрамом / Т. В. Кульсартов [и др.] // Ядерная энергетика Республики Казахстан. ЯЭ-2008: доклады Междунар. конф., Курчатов Казахстан, 11 – 13 июня 2008 г. – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК – С. 111–115.
2. Ronchi, C. On diffusion and precipitation of gas-in-solid/ C. Ronchi // J. Nucl. Mater. - Vol. 148. – 1987. – P. 316.
3. Rabaglino, E. Helium and tritium kinetics in irradiated beryllium pebbles/ E. Rabaglino, J.P. Hiernaut, C. Ronchi, F.Scaffidi-Argentina// Journal of Nuclear Materials. – Vol. 307–311.– 2002.– P. 1424–1429.

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ДИФФУЗИИ И ФАЗООБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТЫХ СИСТЕМАХ МЕТАЛЛ-МЕТАЛЛОИД

<sup>1</sup>Сухоруков И.А., <sup>2</sup>Жанкадамова А.М., <sup>1,2</sup>Русаков В.С., <sup>2</sup>Кадыржанов К.К.

<sup>1</sup>МГУ, им. М.В. Ломоносова, г. Москва, Россия

<sup>2</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан

С развитием ионно-лучевых и ионно-плазменных методов обработки материалов с целью модификации их приповерхностных свойств возникает необходимость в исследованиях процессов диффузии и фазовых превращений в модифицированных слоях [1]. При этом значительный интерес представляют слоистые системы металл-металлоид, полученные с помощью ионной имплантации. Одним из методов исследования таких систем является компьютерное моделирование на основе данных о термодинамических свойствах и фазовых диаграммах. Моделирование термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования позволяет до проведения эксперимента предсказать поведение образующихся фаз при произвольных температурно-временных режимах термического отжига.

В работе предложена физическая модель термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах металл-металлоид, полученных, в том числе, с помощью методов ионной имплантации. В основе модели – законы Фика и сохранения массы, а также механизм взаимной диффузии в двухфазных областях по непрерывным каналам, образованным последовательно расположенными соприкасающимися частицами одной фазы [2, 3]. Предложенная модель реализована нами в результате расширения возможностей программы DIFFUSION, изначально предназначенной для моделирования термически индуцированных процессов в бинарных слоистых металлических системах [4]. В рамках данной модели проведено моделирование термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в имплантационной системе  $Fe:O^+$ , исследованной ранее экспериментально методами мессбауэровской спектроскопии [5, 6].

### Физическая модель

Для описания термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе металл-металлоид предлагается физическая модель, в которую заложены следующие основные принципы.

- Процессы диффузии и фазообразования являются квазистационарными.
- Локальная концентрация металлоида  $n_A(x,t)$  на глубине образца с координатой  $x$  в произвольный момент времени  $t$  определяется процессом межузельной диффузии.
- Результат фазообразования определяется локальной концентрацией компонентов ( $n_A$  – металлоида и  $n_B$  – металла) и диаграммой равновесных состояний бинарной системы А-В:

– если относительная концентрация  $C(x,t) = n_A / (n_A + n_B)$  попадает в область гомогенности одной из фаз –  $C(x,t) \in [C_{\min}, C_{\max}]_{\alpha, \beta}$ , то образуется только эта фаза ( $\alpha$  или  $\beta$ );  
 – если локальная концентрация соответствует двухфазной области на диаграмме состояний –  $C(x,t) \in [C_{\min}, C_{\max}]_{\alpha+\beta}$ , то происходит одновременное образование обеих фаз в количественном отношении, определяемом правилом рычага:

$$p^\alpha = \frac{C(x,t) - C^\beta}{C^\alpha - C^\beta}, \quad p^\beta = \frac{C^\alpha - C(x,t)}{C^\alpha - C^\beta}, \quad (1)$$

где  $C^\alpha$  и  $C^\beta$  – предельные концентрации компонентов в  $\alpha$ - и  $\beta$ -фазах

- Диффузия металлоида происходит по междоузлиям кристаллической решетки металла и в соответствии с законами Фика и сохранения массы описывается уравнением:

$$\frac{\partial n_A(x,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D(x,t) \frac{\partial n_A(x,t)}{\partial x} \right). \quad (2)$$

- В однофазных областях слоистой системы коэффициент диффузии  $D(x,t)$  постоянен по глубине и одинаков для всех однофазных областей, а, следовательно, не зависит от координаты  $x$  и времени  $t$ .

- В двухфазных областях слоистой системы диффузия компонентов проходит в соответствии с предложенным нами ранее [2-4] механизмом взаимной диффузии по непрерывным каналам, образованным последовательно расположенными соприкасающимися частицами одной фазы. Если предположить, что в двухфазной области слоистой системы образуются частицы обеих фаз одинакового линейного размера  $\lambda$ , то вероятности образования непрерывных каналов  $\alpha$ -фазы ( $W_j^\alpha$ ) и каналов  $\beta$ -фазы ( $W_j^\beta$ ), по которым происходит диффузия металлоида от однофазных областей вплоть до  $j$ -го слоя с координатой  $x_j = x^\alpha + j \cdot \lambda$  ( $x^\alpha$  – координата границы однофазной области, содержащей  $\alpha$ -фазу), равны:

$$W_j^\alpha = \sum_{k=j}^m \left( p_{k+1}^\beta \prod_{i=1}^k p_i^\alpha \right) \quad \text{и} \quad W_j^\beta = \sum_{k=1}^j \left( p_{k-1}^\alpha \prod_{i=k}^m p_i^\beta \right). \quad (3)$$

Здесь  $m$  – число слоев в двухфазной области образца, определяемое ее шириной и линейным размером  $\lambda$  образующихся однофазных частиц. При этом эффективный коэффициент взаимной диффузии определяется следующим образом:

$$D(x_j) = D^\alpha(x_j) + D^\beta(x_j) = D_A (W_j^\alpha + W_j^\beta). \quad (4)$$

Здесь  $D^\alpha(x_j)$  и  $D^\beta(x_j)$  – коэффициенты межузельной диффузии металлоида по каналам, образованным частицами  $\alpha$ - и  $\beta$ -фазы соответственно.

Таким образом, для описания процессов диффузии и фазообразования в бинарной слоистой системе металл-металлоид необходимо решить линейное дифференциальное уравнение в частных производных второго порядка (2) с учетом выражений (3) и (4) для коэффициента взаимной диффузии  $D(x,t)$  в различных фазовых областях, пространственные границы которых меняются со временем. При этом начальные и граничные условия, необходимые для решения уравнения, задаются в соответствии с условиями проведения эксперимента. Представленная выше физическая модель для описания термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах металл-металлоид реализована путем расширения функциональных возможностей программы DIFFUSION, созданной нами для моделирования тех же процессов в бинарных слоистых металлических системах [2, 3].

#### **Моделирование процессов диффузии и фазообразования в имплантационной системе Fe:O<sup>+</sup>**

Для проверки правильности предлагаемой модели в работе проведено моделирование процессов диффузии и фазообразования в имплантационной системе  $^{57}\text{Fe}:\text{O}^+$ , которая была получена методами ионной имплантации кислорода с энергией 50 кэВ и дозой  $5 \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup> в приповерхностные слои фольги из  $\alpha$ -железа толщиной 50 мкм, обогащенного до 95т. %  $^{57}\text{Fe}$ . Далее система подвергалась последовательным изохронным получасовым термическим отжигам в интервале температур от 180 до 700°C. После каждого отжига проводились исследования при комнатной температуре методами мессбауэровской спектроскопии на конверсионных электронах в геометрии обратного рассеяния со стороны поверхности  $\alpha$ -Fe, подвергнутой имплантации ионами кислорода [5, 6]. В результате были получены зависимости относительных интенсивностей парциальных мессбауэровских спектров образующихся фаз от температуры последовательных изохронных отжигов (см. рис. 1а).

При моделировании процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе  $\text{Fe}:\text{O}^+$  использовалась фазовая диаграмма равновесных состояний бинарной системы Fe-O, приведенной в [7]. Начальный концентрационный профиль ионов кислорода, использованный нами при моделировании, был получен в результате расчета при помощи пакета программного обеспечения SRIM [8], предназначенного для моделирования процессов распыления и перемещения ионов в веществе при их имплантации. При этом задавались тип мишени – Fe, тип имплантируемых ионов –  $\text{O}^+$  и их энергия – 50 кэВ, доза облучения  $9.5 \cdot 10^{17}$  ион/см<sup>2</sup> подбиралась для наилучшего описания экспериментальных данных. При моделировании было сделано допущение о том, что с обеих поверхностей слоистой системы в процессе имплантации и последующих термических отжигов не происходит заметной потери кислорода. Необходимые для расчетов значения частотного фактора  $D_0$  и энергии активации  $Q_0$  подбирались с целью лучшего описания экспериментальных данных и были взяты равными  $D_0 = 7 \cdot 10^{-4}$  мкм<sup>2</sup>/с и  $Q_0 = 4.1 \cdot 10^4$  Дж/моль.

При вычислении относительных интенсивностей парциальных КЭМС-спектров эффективная глубина выхода электронов конверсии для железа была взята равной 0.04 мкм. Данное значение использовалась нами в аналогичных расчетах для слоистой системы Fe-Be, полученной методом магнетронного распыления [9]. Эффективная глубина выхода электронов конверсии для кислорода принималась значительно большей.

Зависимости относительных интенсивностей парциальных мессбауэровских спектров электронов конверсии образующихся фаз от температуры последовательных термических отжигов для системы  $\text{Fe}:\text{O}^+$ , которые получены в результате проведенного эксперимента и численных расчетов в рамках описанной физической модели, показаны на рис. 1. Экспериментальные данные (рис.1а) показывают, что после первого этапа отжига образуются фазы  $\alpha\text{-Fe}$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  и  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Фаза  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  существует при температурах отжига до 300°C. Фаза FeO появляется при температурах отжига с  $T_{\text{ann}} = 500^\circ\text{C}$  и выше. На рисунке показаны расчетные зависимости в случае закалки (рис.1б) и отсутствия закалки (рис.1в) образца после отжига для имплантационной системы  $^{57}\text{Fe}:\text{O}^+$ . При температурах отжига ниже  $T_{\text{ann}} = 500^\circ\text{C}$  они хорошо соответствуют экспериментальным данным, а при температурах выше  $T_{\text{ann}} = 500^\circ\text{C}$  имеются различия, обусловленные конечной скоростью остывания образца.

Концентрационные профили атомов кислорода ( $C_{\text{O}}$ ) и относительное содержание образующихся фаз ( $C_{\text{phase}}$ ) по глубине слоистой системы  $\text{Fe}:\text{O}^+$  на различных этапах последовательных изохронных отжигов в случае закалки образца после отжигов представлены на рис. 2.

Начальный концентрационный профиль кислорода представляет одномодальное распределение концентрации по глубине со значением 28 % (ат.) O на поверхности образца и с максимумом на глубине около 0.06 мкм величиной 62 % (ат.) O, что превышает концентрацию кислорода в  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . При  $T_{\text{ann}} = 180^\circ\text{C}$  профиль кислорода практически не изменяется и соответствует начальному. Как видим, на первых этапах отжига в приповерхностном слое образца со стороны кислорода образуются фазы  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  и  $\text{O}_2$ . При последующих отжигах концентрация в приповерхностном слое толщиной 0.05 мкм выравнивается около среднего значения 50 % (ат.) O, и на поверхность выходит фаза  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , при этом в остальных частях образца остается только  $\alpha\text{-Fe}$ . Расчет в случае закалки образца после отжигов (рис. 2) показывает, что при высоких температурах (более  $T_{\text{ann}} = 500^\circ\text{C}$ ) фаза  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  исчезает и на поверхность выходит фаза FeO. В отсутствие закалки фазовый состав практически не меняется. В результате проведенных последовательных изохронных отжигов граница области проникновения кислорода в матрицу перемещается вглубь образца и при  $T_{\text{ann}} = 700^\circ\text{C}$  достигает глубины порядка 0.5 мкм.

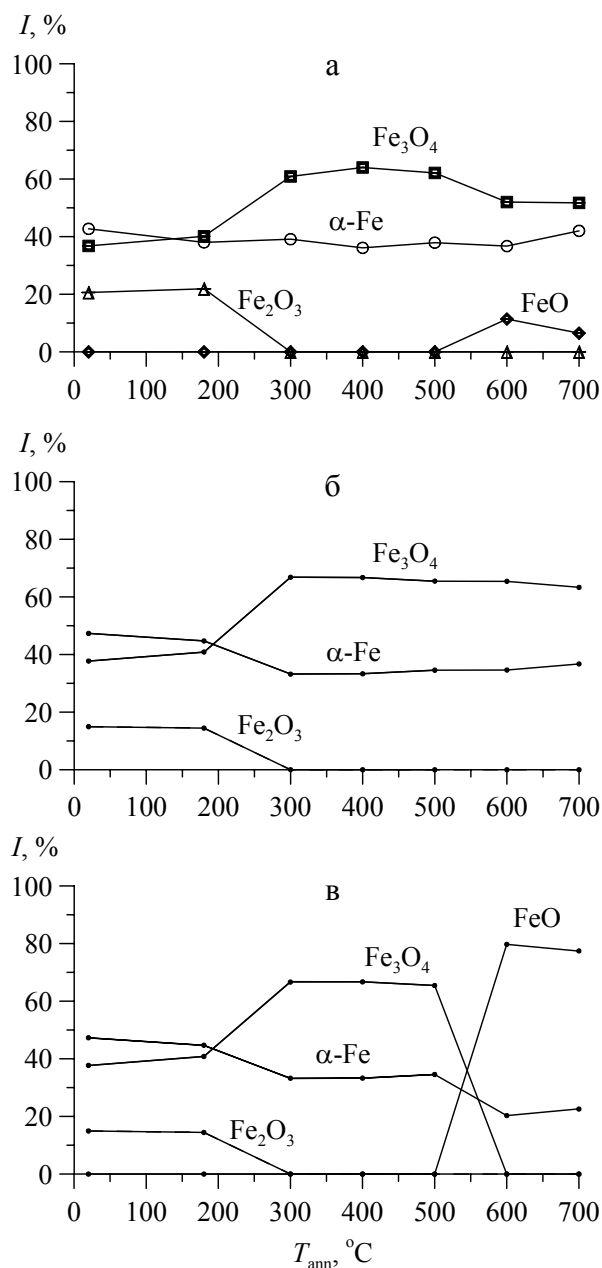


Рис. 1. Зависимости относительных интенсивностей  $I$  парциальных мессбауэровских спектров электронов конверсии от температуры  $T_{\text{ann}}$  последовательных изохронных отжигов: экспериментальные (а) и расчетные в случае закалки (б) и отсутствия закалки (в) образца после отжигов для имплантационной системы  $^{57}\text{Fe}:\text{O}^+$  со стороны кислорода

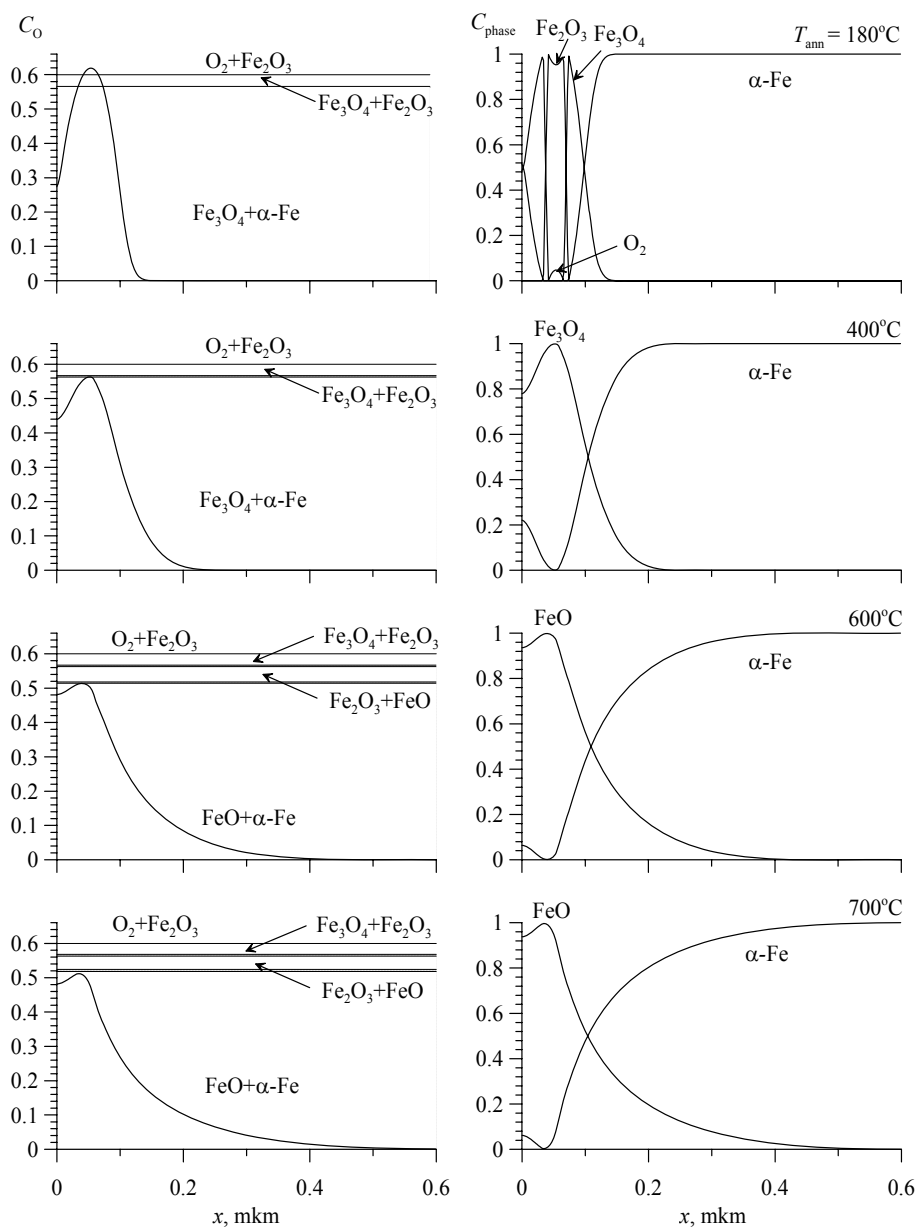


Рис. 2. Концентрационные профили атомов кислорода ( $C_O$ ) и относительное содержание образующихся фаз ( $C_{\text{phase}}$ ) по глубине слоистой системы Fe:O+

Координаты границ образующихся фаз  $x$  с двухфазными областями в зависимости от времени изохронных отжигов  $t_{\text{ann}}$  представлены на рис. 3. Как видим, сразу после имплантации в образце, кроме  $\alpha$ -Fe присутствуют различные фазы  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  и  $\text{O}_2$ , которые располагаются на глубинах не более 0.15 мкм. Первый отжиг при  $T_{\text{ann}} = 180^\circ\text{C}$  не производит заметных изменений в фазовом составе. Во время следующего отжига при  $T_{\text{ann}} = 300^\circ\text{C}$  приблизительно через 0.15 ч (0.65 ч от общего времени) пропадает фаза  $\text{O}_2$  и постепенно сужается двухфазная область  $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_3\text{O}_4$ . В начале отжига при  $T_{\text{ann}} = 400^\circ\text{C}$  пропадает фаза  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  и постепенно расширяется двухфазная область  $\alpha\text{-Fe} + \text{Fe}_3\text{O}_4$ . Фаза  $\text{FeO}$  появляется при отжиге при  $T_{\text{ann}} = 600^\circ\text{C}$ , которая пропадает в однофазном состоянии менее чем через 0.05 ч (2.05 ч от общего времени отжига). При дальнейших отжигах постепенно расширяется двухфазная область  $\alpha\text{-Fe} + \text{FeO}$ .

Результаты расчетов в рамках описанной выше модели согласуются с экспериментально установленными методом мессбауровской спектроскопии последовательностью фазовых превращений и зависимостью от температуры отжига относительного содержания интерметаллидов в системе Fe:O<sup>+</sup>. Можно сделать вывод, что характер фазовых превращений в имплантационной системе Fe:O<sup>+</sup> определяется в первую очередь изменением локальной концентрации компонентов в процессе диффузии кислорода и отражает особенности фазовой диаграммы равновесных состояний бинарной системы Fe-O.

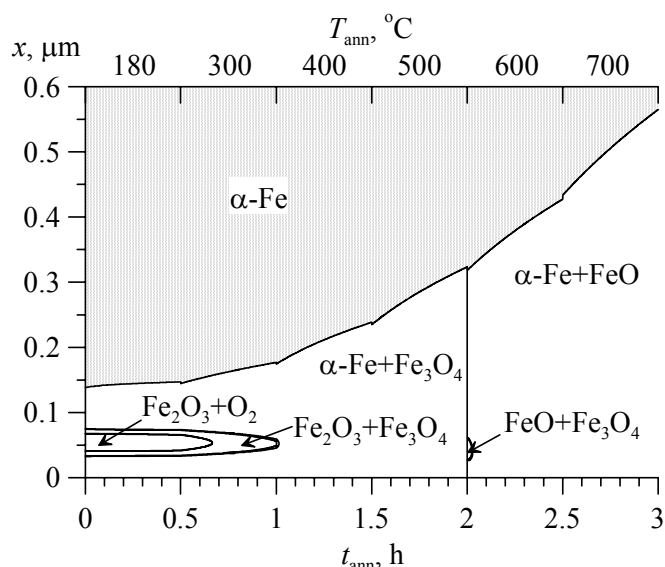


Рис. 3. Координаты  $x$  межфазных границ в зависимости от времени  $t_{\text{ann}}$  изохронных термических отжига в имплантационной системе  $^{57}\text{Fe}:\text{O}$

### Заключение

Предложена физическая модель термически индуцированных процессов диффузии, и фазообразования в имплантационных системах металл-металлоид. В основе физической модели – законы Фика и сохранения массы, а также сформулированный ранее механизм взаимной диффузии компонентов по непрерывным каналам фаз в двухфазных областях системы. Осуществлена программная реализация модели, позволяющая количественно описывать кинетику этих процессов при произвольных режимах отжига.

Проведено моделирование термически индуцированных процессов имплантационной системе  $\text{Fe}:\text{O}^+$  при последовательных изохронных термических отжигах в рамках предложенной модели. Результаты моделирования хорошо описывают экспериментально установленные последовательности фазовых превращений и относительное содержание интерметаллидов на всех этапах термического отжига имплантационной системы  $\text{Fe}:\text{O}^+$ .

Согласие численных расчетов с экспериментальными данными, полученными методами мессбауэровской спектроскопии, указывает на то, что характер фазовых превращений в исследованной системе в соответствии с предложенной физической моделью определяется изменением локальной концентрации металлоида в процессе его межузельной диффузии и соответствует особенностям фазовой диаграммы равновесных состояний бинарной системы  $\text{Fe}-\text{O}$ .

### Список литературы

1. Кадыржанов К.К., Комаров Ф.Ф., Погребняк А.Д. и др. Ионно-лучевая и ионно-плазменная модификация материалов. Под ред. В.С. Русакова – М.: Изд-во МГУ. 2005. 640с.
2. Kadyrzhanov K.K., Rusakov V.S., Turkebaev T.E. // J. Phys.: Condens. Matter. 2006. V. 18. P. 4113.
3. Русаков В.С., Кадыржанов К.К., Туркебаев Т.Э. и др. // Поверхность. 2006. №1. С.33.
4. Русаков В.С., Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Кадыржанов К.К. // Поверхность. 2011. №6. С. 103.
5. Русаков В.С., Кадыржанов К.К., Туркебаев Т.Э. и др. // Поверхность. 1995. №.7-8. С. 28.
6. Kadyrzhanov K.K., Rusakov V.S., Turkebaev T.E. // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **V.** 2000. V.170 (1-2). P. 85.
7. Диаграммы состояния двойных и многокомпонентных систем на основе железа. Под ред. Банных О.А., Дрица М.Е. Москва. Металлургия. 1986.
8. Ziegler J., Ziegler M., Biersack J. // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **V.** 2010. V. 268. P. 1818.
9. Kadyrzhanov K.K., Rusakov V.S., Turkebaev T.E. et al. // Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. **V.** 2001. V. 174. P. 463.

## МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕРМИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННЫХ ПРОЦЕССОВ ДИФфуЗИИ И ФАЗОБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТЫХ СИСТЕМАХ С ТРЕМЯ ИЗОТОПАМИ ДВУХ ЭЛЕМЕНТОВ

<sup>1</sup>Сухоруков И.А., <sup>2</sup>Жанкадамова А.М., <sup>1,2</sup>Русаков В.С., <sup>2</sup>Кадыржанов К.К.

<sup>1</sup>МГУ, им. М.В. Ломоносова, г. Москва, Россия

<sup>2</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан

Одним из методов улучшения характеристик рабочих поверхностей материалов является нанесение на их поверхность тонких покрытий с последующим термическим отжигом. В настоящее время нами проводятся экспериментальные (см., например, [1-6]) и теоретические [7, 8] исследования термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования при последовательных изотермических и изохронных отжигах слоистых бинарных металлических систем, полученных методами ионно-плазменного распыления. Результаты теоретических расчетов в

рамках предложенной нами модели хорошо согласуются с экспериментальными данными, полученными с помощью мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии.

Для более эффективного использования методов мессбауэровской спектроскопии при исследовании слоистых бинарных систем с подложкой из  $\alpha$ -железа возможно дополнительное введение мессбауэровских ядер  $^{57}\text{Fe}$  в образец. Наличие изотопа  $^{57}\text{Fe}$  позволяет получить необходимую информацию непосредственно из тех слоев системы, где наиболее интенсивно происходят термически индуцированные процессы диффузии и фазообразования. Такие слоистые системы являются бинарными с точки зрения химии и физики процессов диффузии и фазообразования, но при этом имеют три изотопных компонента, к которым избирательно чувствительна мессбауэровская спектроскопия. Поэтому, для описания процессов диффузии этих компонентов и участия их в фазообразовании необходимы соответствующие математические модели.

В настоящей работе на основе линейной теории Онзагера (см., например, [9]) в рамках предложенных ранее физических принципов [7, 8], включая механизм взаимной диффузии компонентов бинарной слоистой системы в двухфазных концентрационных областях, описывается математическая модель термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах с тремя изотопами двух элементов. Для проверки правильности предлагаемой модели проведен сравнительный анализ результатов моделирования термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{-Ti}(1 \text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$  при последовательном изотермическом отжиге с экспериментальными данными, полученными методами мессбауэровской спектроскопии на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  и методом рентгеновской дифрактометрии.

**Физическая модель**

Для описания термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах с тремя изотопами двух элементов воспользуемся физической моделью [7, 8], обобщенной на этот случай. Сформулируем её основные принципы.

- Процессы диффузии и фазообразования являются квазистационарными.
- Результат фазообразования определяется локальной концентрацией компонентов и диаграммой равновесных состояний бинарной системы. Локальная концентрация компонентов  $C_{1,2,3}(x,t)$  на глубине образца с координатой  $x$  в произвольный момент времени  $t$  определяется процессом их взаимной диффузии.
- Различие в объемах, приходящихся на атомы компонентов А и В, учитывается путем пересчета исходных толщин слоев в многослойных системах на некоторые эффективные толщины, соответствующие одинаковому эффективному объему для атомов всех компонентов.
- Диффузия в бинарных с точки зрения химии и физики диффузии системах, имеющих при этом три изотопных компонента, в соответствии с теорией Онзагера и учетом изотопного состава описывается системой уравнений для концентраций атомов А и компонента 1 (одного из изотопов элемента В):

$$\begin{cases} \frac{\partial C_A}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \tilde{D} \frac{\partial C_A}{\partial x} \right), \\ \frac{\partial C_1}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( (\tilde{D}_{11} - \tilde{D}_{12}) \frac{\partial C_1}{\partial x} - \tilde{D}_{12} \frac{\partial C_A}{\partial x} \right). \end{cases} \quad (1)$$

Здесь  $\tilde{D}$  – взаимный коэффициент диффузии Даркена, а  $\tilde{D}_{11}$  и  $\tilde{D}_{12}$  – коэффициенты взаимной диффузии, для которых в случае идеальных твердых растворов справедливы следующие соотношения:

$$\begin{cases} \tilde{D}_{11} = D_B + C_1(D_A - D_B), \\ \tilde{D}_{12} = C_1(D_A - D_B), \\ \tilde{D} = (1 - C_A)D_A + C_A D_B. \end{cases} \quad (2)$$

Здесь  $D_A$  и  $D_B$  – коэффициенты самодиффузии компонентов.

- В однофазных областях слоистой системы диффузия компонентов в бинарных сплавах описывается в соответствии с системой уравнений (1), где коэффициенты взаимной диффузии определяются в соответствии с (2)

- В двухфазных областях слоистой системы диффузия компонентов проходит в соответствии с предложенным нами в работах [7, 8] механизмом взаимной диффузии по непрерывным каналам, образованным последовательно расположенными соприкасающимися частицами одной фазы. В двухфазной области ( $\alpha$ - и  $\beta$ -фазы) слоистой системы имеются межфазные границы, на которых даже в случае термодинамического равновесия происходит скачок концентрации компонентов от предельной концентрации в одной фазе ( $C^\alpha$ ) до предельной концентрации в другой фазе ( $C^\beta$ ). В результате процесса диффузии нарушается условие термодинамического равновесия на границе фаз и происходит перераспределение фазового состава в соответствии с диаграммой равновесных состояний. Если предположить, что в двухфазной области слоистой системы образуются частицы обеих фаз одинакового линейного размера  $\lambda$ , то в  $j$ -ом слое двухфазной области с координатой  $x_j = x^\alpha + j \cdot \lambda$  ( $x^\alpha$  – координата границы однофазной области, содержащей  $\alpha$ -фазу), эффективные коэффициенты взаимной диффузии определяются следующим образом [7, 8]:

$$\begin{aligned} \tilde{D}(x_j) &= D^\alpha(x_j) + D^\beta(x_j) = \\ &= (D_A(1 - C_A^\alpha) + D_B C_A^\alpha)W_j^\alpha + (D_A(1 - C_A^\beta) + D_B C_A^\beta)W_j^\beta; \end{aligned} \quad (3)$$

$$\begin{aligned} \tilde{D}_{11} - \tilde{D}_{12} &= D_B = \tilde{D}_{11}^\alpha(x_j) + \tilde{D}_{11}^\beta(x_j) - \tilde{D}_{12}^\alpha(x_j) - \tilde{D}_{12}^\beta(x_j) = \\ &= D_B W_j^\alpha + D_B W_j^\beta = D_B (W_j^\alpha + W_j^\beta); \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \tilde{D}_{12} &= \tilde{D}_{12}^\alpha(x_j) + \tilde{D}_{12}^\beta(x_j) = C_1^\alpha(D_A - D_B)W_j^\alpha + C_1^\beta(D_A - D_B)W_j^\beta = \\ &= (D_A - D_B) \left( \frac{1 - C_A^\alpha}{1 - C_A} c_1 W_j^\alpha + \frac{1 - C_A^\beta}{1 - C_A} c_1 W_j^\beta \right). \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь  $D^\alpha(x_j)$  и  $D^\beta(x_j)$  – коэффициенты взаимной диффузии компонентов по каналам, образованным частицами  $\alpha$ - и  $\beta$ -фазы, соответственно, а  $W_j^\alpha$  и  $W_j^\beta$  – вероятности образования непрерывных каналов  $\alpha$ -фазы длиной, превышающей  $x_j - x^\alpha$ , и каналов  $\beta$ -фазы длиной, превышающей  $x^\beta - x_j$ , по которым происходит взаимная диффузия компонентов от однофазных областей вплоть до  $j$ -го слоя.

Таким образом, для описания процессов диффузии и фазообразования в системах с тремя изотопами двух элементов необходимо решить систему линейных дифференциальных уравнений в частных производных второго порядка (1) с учетом выражений (2) и (3-5) для коэффициентов взаимной диффузии  $\tilde{D}(x, t)$ ,  $\tilde{D}_{11}(x, t)$ ,  $\tilde{D}_{12}(x, t)$  в различных фазовых областях. При этом начальные и граничные условия, необходимые для решения уравнения, задаются в соответствии с условиями проведения эксперимента.

Представленная выше физическая модель для описания процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах с тремя изотопами двух элементов реализована нами в результате модернизации программы DIFFUSION, предусмотренной для моделирования тех же процессов в бинарных слоистых системах [7, 8]. Программа дополнена следующими функциональными возможностями: задание любых начальных концентрационных профилей изотопных компонентов; расчет на всех этапах процесса потоков изотопных компонентов и относительных интенсивностей парциальных мессбауэровских спектров, полученных регистрацией  $\gamma$ -квантов в геометрии на прохождение, и регистрацией конверсионных электронов в геометрии обратного рассеяния с учетом изотопного состава.

### Результаты моделирования

Для моделирования термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе с тремя изотопами двух элементов и сравнения с результатами экспериментальных исследований была выбрана система  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{--Ti}(1 \text{ мкм})\text{--Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{--}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$  [11]. Эта система была получена с помощью магнетронного распыления титана на подложку из раствора  $\text{Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})$  титана в  $\alpha\text{-Fe}$  с естественным обогащением (2.16 %) изотопом  $^{57}\text{Fe}$  и последующего термовакуумного напыления железа, обогащенного до 86 ат. %  $^{57}\text{Fe}$ . Полученная таким образом слоистая система подвергалась последовательным изотермическим отжигам в вакууме при температуре 650°C. После каждого отжига проводились исследования при комнатной температуре методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии. Измерения мессбауэровских спектров осуществлялись путем регистрации  $\gamma$ -квантов в геометрии на прохождение (МС) и конверсионных электронов в геометрии обратного рассеяния (КЭМС), а измерения рентгеновских дифрактограмм – в геометрии Брэгга-Брентано [11].

При моделировании процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{--Ti}(1 \text{ мкм})\text{--Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{--}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$  использовалась фазовая диаграмма равновесных состояний бинарной системы Fe-Ti [12]. В зависимости от содержания компонентов в этой системе образуются растворы  $\alpha\text{-Fe}(\text{Ti})$ ,  $\alpha\text{-Ti}(\text{Fe})$  и  $\beta\text{-Ti}(\text{Fe})$ , а также интерметаллиды FeTi и Fe<sub>2</sub>Ti. Соединение FeTi образуется по перитектической реакции и имеет область гомогенности ~3 ат.%. Соединение Fe<sub>2</sub>Ti имеет более широкую область гомогенности ~8-10 ат.%. Твердый раствор на основе  $\beta\text{-Ti}$  претерпевает эвтектичный распад при температуре близкой к 585°C. Растворимость Fe в  $\alpha\text{-Ti}$  плавно увеличивается с ростом температуры от 0,007 ат.% Fe при температуре 360°C до максимального значения 0,057 ат.% Fe при 790°C. Максимальное значение растворимости Ti в  $\alpha\text{-Fe}$  около 0,76% ат.% Ti при 1100°C. Для описания термически индуцированных процессов диффузии, необходимы также коэффициенты самодиффузии (парциальные коэффициенты диффузии) компонентов –  $D_{\text{Ti}}$  и  $D_{\text{Fe}}$ . Данные коэффициенты подбирались нами с целью наилучшего описания экспериментальных данных, полученных при проведении последовательных изотермических отжигов, и были взяты равными  $D_{\text{Ti}} = 1 \cdot 10^{-5} \text{ мкм}^2/\text{с}$  и  $D_{\text{Fe}} = 4.4 \cdot 10^{-6} \text{ мкм}^2/\text{с}$  соответственно. Значения этих коэффициентов для массивных образцов, приведенные в работах [13-15], достаточно противоречивы и отличаются друг от друга на несколько порядков. Подобранные нами значения коэффициентов диффузии оказались близкими к значениям, которые получаются для 650°C при использовании частотного множителя и энергии активации в законе Аррениуса, приведенные в работе [15].



На рис. 1 приведены экспериментально определенные (символы, соединенные сплошными линиями) и расчетные (штриховые линии) зависимости относительных интенсивностей парциальных МС-спектров (MS), КЭМС-спектров (CEMS) и рентгеновских дифракционных рефлексов (X-ray) образующихся фаз в зависимости от времени  $t_{\text{ann}}$  последовательного изотермического отжига при  $T_{\text{ann}} = 650^\circ\text{C}$  для слоистой системы  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{-Ti}(1 \text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$ .

Относительные интенсивности парциальных мессбауэровских спектров различных фаз равны относительным количествам этих фаз во всем объеме слоистой системы в атомных единицах мессбауэровского изотопа  $^{57}\text{Fe}$ , если предположить одинаковую вероятность эффекта Мессбауэра на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  в этих фазах. Как видим, уже после первого этапа отжига ( $t_{\text{ann}} = 0.5 \text{ ч}$ ) появляются фазы FeTi и Fe<sub>2</sub>Ti. Затем содержание в образце интерметаллида Fe<sub>2</sub>Ti плавно растет, а интерметаллида FeTi уменьшается. После 40 ч отжига обнаружить соединение FeTi практически не удается. При дальнейшем отжиге соотношение интерметаллида Fe<sub>2</sub>Ti и раствора  $\alpha\text{-Fe(Ti)}$  изменяется незначительно. Сравнение расчетных зависимостей (штриховые линии) с экспериментальными данными (символы, соединенные сплошными линиями) показывает, что результаты моделирования хорошо описывают кинетику процессов диффузии и фазообразования, а также соотношение образующихся интерметаллидов в слоистой системе  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{-Ti}(1 \text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})$  на всех этапах термического отжига.

В случае КЭМС-спектров (см. рис 1) относительные интенсивности парциальных мессбауэровских спектров различных фаз в тех же предположениях, что и в случае МС-спектров, равны относительным количествам этих фаз в атомных единицах мессбауэровского изотопа  $^{57}\text{Fe}$ , но уже не во всем объеме, а в приповерхностных слоях образца. Для расчета относительных интенсивностей парциальных спектров, полученных путем регистрации конверсионных электронов в геометрии обратного рассеяния, учитывалась функция выхода регистрируемых электронов конверсии экспоненциального вида [8]. В нашем случае значения эффективных глубин выхода электронов конверсии для однородных слоев железа и титана были взяты равными  $h_{\text{CEMS}} = 0.04 \text{ мкм}$ .

На рис. 1 видно, что при малых временах отжига в приповерхностном слое со стороны титанового покрытия наблюдается в основном интерметаллид FeTi. С увеличением времени изотермического отжига  $t_{\text{ann}}$  происходит уменьшение относительной интенсивности парциального КЭМС-спектра FeTi. Другими словами, в приповерхностном слое наблюдается распад FeTi, сопровождающийся увеличением содержания интерметаллида Fe<sub>2</sub>Ti. В конце рассматриваемого процесса, на поверхности наблюдается преимущественно Fe<sub>2</sub>Ti. Как видно на рис. 1 расчетные зависимости относительных интенсивностей парциальных КЭМС-спектров различных фаз слоистой системы  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{-Ti}(1 \text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$  от времени изотермического отжига  $t_{\text{ann}}$ , полученные в рамках описанной выше физической модели, соответствуют наблюдаемым экспериментальным данным. Заметим, что малое количество (< 5 ат.%  $^{57}\text{Fe}$ ) раствора  $\alpha\text{-Fe(Ti)}$ , предсказываемое в результате расчета, с учетом характера соответствующего ему парциального спектра (в отличие от парамагнитных спектров интерметаллидов Fe<sub>2</sub>Ti и FeTi, он представляет собой хорошо расщепленный зеemanовский секстет) находится за пределами чувствительности проведенного мессбауэровского эксперимента.

Наблюдаемая с помощью рентгеновской дифрактометрии (рис. 1) последовательность фазообразования и характерные времена существования фаз в процессе изотермического отжига слоистой системы соответствуют результатам, полученным методами мессбауэровской спектроскопии. Наблюдаемое существенное отличие значений относительных интенсивностей дифракционных рефлексов от значений относительных интенсивностей парциальных

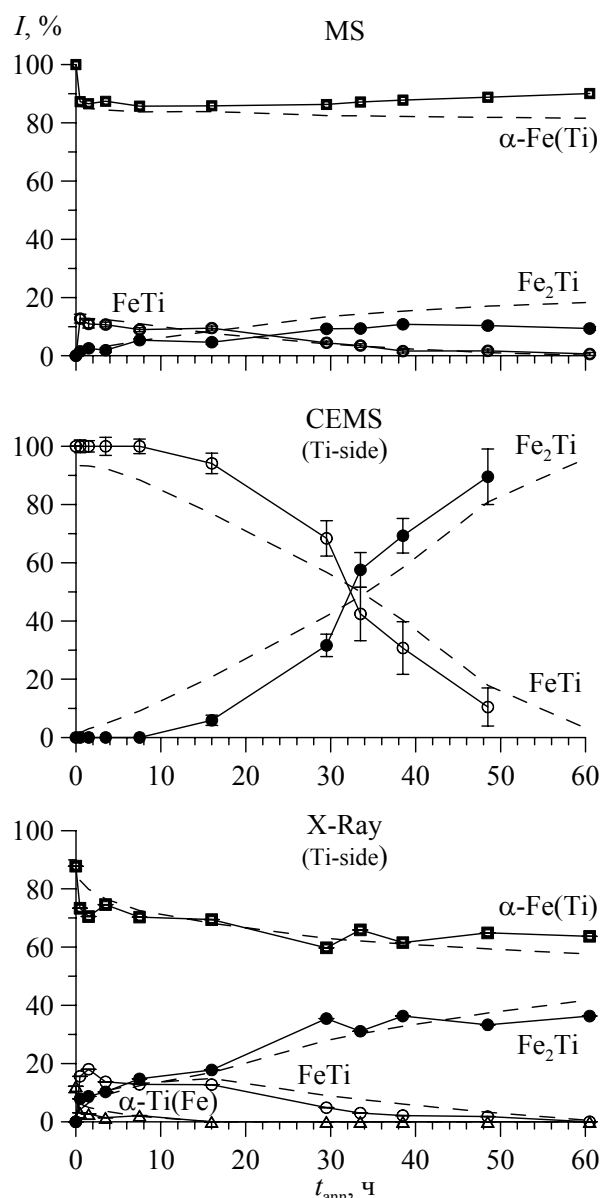


Рис. 1. Относительные интенсивности парциальных мессбауэровских спектров (MS), парциальных КЭМС-спектров (CEMS) и рентгеновских дифракционных рефлексов (X-ray) образующихся фаз в зависимости от времени  $t_{\text{ann}}$  последовательного изотермического отжига при  $T_{\text{ann}} = 650^\circ\text{C}$  для слоистой системы  $^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})\text{-Ti}(1 \text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13 \text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07 \text{ мкм})$ .

мессбауэровских спектров для образующихся фаз на всех этапах отжига объясняется главным образом тем, что рентгеновская дифрактометрия в геометрии Брэгга-Брентано дает информацию о приповерхностном слое образца, определяемой эффективной глубиной проникновения рентгеновского излучения, а мессбауэровская спектроскопия в геометрии на прохождение – обо всем объеме образца, а в геометрии обратного рассеяния – о приповерхностных слоях образца.

Для сравнения относительных интенсивностей рефлексов образующихся фаз, полученных методами рентгеновской дифрактометрии, с результатами моделирования (рис. 1), использовалась эффективная глубина проникновения рентгеновского излучения [8] в слоистую систему:  $h_{X\text{-ray}} = 4\text{мкм}$ . Как видим, результаты теоретических расчетов отражают основные особенности изменения относительных интенсивностей дифракционных рефлексов фаз, полученных экспериментально. Следует обратить внимание на то, что образец исследовался экспериментально при температурах значительно ниже температур отжига – при комнатной температуре. При данной температуре коэффициенты диффузии уменьшаются настолько, что диффузией можно пренебречь. При этом твердый раствор  $\beta\text{-Ti(Fe)}$  распадается на  $\alpha\text{-Ti(Fe)}$  и интерметаллид  $\text{FeTi}$ . При расчете зависимостей на рис. 1 количество всех фаз, в том числе и количество  $\beta\text{-Ti(Fe)}$ , пересчитывалось в соответствии с фазовой диаграммой равновесных состояний бинарной системы  $\text{Fe-Ti}$  с температуры отжига на температуру, при которой проводились экспериментальные исследования.

Экспериментально установленные методами мессбауэровской спектроскопии на ядрах  $^{57}\text{Fe}$  и рентгеновской дифрактометрии последовательности фазовых превращений и относительное содержание интерметаллидов в слоистой системе  $^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})\text{-Ti}(1\text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13\text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})$  на всех этапах последовательного изохронного отжига показывают хорошее соответствие с результатами расчетов в рамках описанной выше модели. Характер фазовых превращений определяется изменением локальной концентрации компонентов в процессе их диффузии и отражает особенности соответствующей фазовой диаграммы равновесных состояний.

### **Заключение**

Предложена математическая модель термически индуцированных процессов диффузии, фазообразования и стабилизации пространственно неоднородного структурно-фазового состояния в слоистых системах с тремя изотопами двух элементов. В основе физической модели – линейная термодинамическая теория неравновесных процессов (теория Онзагера) и сформулированный ранее механизм взаимной диффузии компонентов по непрерывным каналам фаз в двухфазных областях системы.

Осуществлена программная реализация модели, позволяющая количественно описывать кинетику этих процессов при произвольных режимах отжига.

Проведено моделирование термически индуцированных процессов в слоистой системе  $^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})\text{-Ti}(1\text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13\text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})$  при последовательных изотермических отжигах в рамках описанной модели.

Результаты моделирования хорошо описывают экспериментально установленные последовательности фазовых превращений и относительное содержание интерметаллидов на всех этапах термического отжига слоистой системы  $^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})\text{-Ti}(1\text{ мкм})\text{-Fe}_{0.96}\text{Ti}_{0.04}(13\text{ мкм})\text{-}^{57}\text{Fe}(0.07\text{ мкм})$ .

Согласие численных расчетов с экспериментальными данными, полученными методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии, указывает на то, что характер фазовых превращений в исследованных слоистых системах в соответствии с предложенной физической моделью определяется изменением локальной концентрации компонентов в процессе их взаимной диффузии и соответствует особенностям фазовой диаграммы равновесных состояний бинарной системы  $\text{Fe-Ti}$ .

### **Список литературы**

1. Кадыржанов К.К., Керимов Э.А., Плаксин Д.А. и др. // Поверхность. 2003. № 8. С.74.
2. Русаков В.С., Кадыржанов К.К., Суслов Е.Е. и др. // Поверхность. 2004. № 12. С.22.
3. Русаков В.С., Кадыржанов К.К., Коршиев Б.О. и др. // Поверхность. 2005. № 1. С.60.
4. Русаков В.С., Кадыржанов К.К., Туркбаев Т.Э. // Физика металлов и металловедение. 2007. **104**. № 4. С.387.
5. Аргынов А.Б., Жубаев А.К., Русаков В.С., Кадыржанов К.К. // ФММ. 2008. **105**, № 2. С.182.
6. Манакова И.А., Верещак М.Ф., Сергеева Л.С. и др. // ФММ. 2010. **109**, № 5. С.584.
7. Русаков В.С., Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Кадыржанов К.К. // ФММ. 2010. **109**, № 5. С.584.
8. Русаков В.С., Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Кадыржанов К.К. // Поверхность. 2011. №6. С. 103.
9. Гуров К.П., Карташкин Б.А., Угасте Ю.Э. Взаимная диффузия в многофазных металлических системах. М.: Наука, 1981.
10. Даркен Л.С., Гурри Р.В. Физическая химия металлов. М.: Metallurgizdat, 1960.
11. Сергеева Л.С., Верещак М.Ф., Манакова И.А. и др. – Вестник НЯЦ РК. 2006. № 4. С.28.
12. Диаграммы состояния двойных металлических систем: Справочник: В 3 т.: Т.2. // Под общ. ред. Н.П. Лякишева. – М.: Машиностроение, 1997.
13. Алешин А.Н., Бокштейн Б.С., Никольский Г.С. и др. // Известия АН СССР. Металлы. 1973. № 1. С.223.
14. Лариков Л.Н., Исайчев В.И. Структура и свойства металлов и сплавов. Диффузия в металлах и сплавах. Киев: Наукова Думка, 1987.
15. Ефименко Л.П., Петрова Л.П., Полякова И.Г. и др. // Известия АН СССР. Металлы. 1997. № 1. С.168.

Д.Л. Алонцева

*Восточно-Казахстанский государственный технический университет им.  
Д. Серикбаева, ул. Протозанова 69, Г. Усть-Каменогорск, Казахстан, 070004*

*На основе экспериментального исследования структурно-фазового состава и свойств порошковых покрытий на основе Ni-Cr, нанесенных методом плазменной детонации на стальные подложки, предложена модель их послойного строения и проведен анализ причин формирования наблюдаемых микроструктур.*

### Введение

Особенностью плазменно-детонационного метода нанесения порошковых покрытий является формирование достаточно толстых покрытий (толщина 150-500 мкм) в отличие от методов PVD и CVD, при которых формируются тонкие пленки на подложке. Преимущества плазменно-детонационного метода нанесения порошковых покрытий перед другими современными методами получения покрытий: высокоскоростным сверхзвуковым газопламенным напылением (HVOF, HVOF), плазменного напыления (APS), газопламенного напыления (Flame spray) и др. заключаются в одновременном обеспечении высокой скорости частиц и нагрева. Частицы порошка деформируются при ударе о поверхность подложки и одновременно оплавляются, спекаясь в сплав покрытия, что обеспечивает высокую производительность данного метода. Нанесение покрытий проводится в воздушной среде, не требуются защитные газы и дополнительные устройства для создания потока в сторону подложки. Сущность электромагнитного метода ускорения порошков при плазменно-детонационном нанесении описана в работе [1]. Однако, покрытия, полученные методом ПД (плазменной детонации) часто имеют высокую пористость за счет неполного проплавления частиц порошка при нанесении. Выбор малых фракций порошка ограничен опасностью полного испарения отдельных мелких порошинок при нанесении покрытия. На практике часто используют повторную обработку покрытия плазменной струей или электронным пучком. Но для выбора режимов обработки необходимо представление о строении покрытий, нанесенных ПД. В литературе представлено очень мало данных о строении таких покрытий.

**Цель работы:** исследование особенностей структурно-фазового строения порошковых покрытий на основе Ni-Cr, нанесенных методом плазменной детонации на стальные подложки и разработка модели их строения.

### Материал и методы исследования

В плазменно-детонационной установке «Импульс-6» на подложке из углеродистой стали обыкновенного качества Ст 3 (Fe – основа, С - 0,25 вес.%, Mn - 0,8 вес.%, Si - 0,37 вес.%, P < 0,045 вес.%) формировались защитные покрытия толщиной от 150 до 300 мкм из порошковых сплавов на основе Ni-Cr: ПГ-19Н-01 (Ni-осн.; Cr -8...14 вес.%; В-2,3 вес.%; Si-1,2-3,2 вес.%; Fe-5 вес.%; С-0,5 вес.%) и ПГ-10Н-01 (Ni-осн.; Cr -14...20 вес.%; В-3,3 вес.%; Si-4,8 вес.%; Fe до 7 вес.%; С-0,8 вес.%), ГОСТ 28377-89 и Co-Cr: АН-35 (Co-осн., Cr -8...32 вес.%; Ni ≤ вес.3%; Si - 1,7...2,5 вес.%; Fe ≤ 3 вес.%; С -1,3...1,7 вес.%; W- 4...5 вес.%), ГОСТ 21448-75. Для напыления применялся порошок с размером фракций от 56 до 100 мкм. В качестве материала подложки использовались стальные образцы размером 20х30х20 мм<sup>3</sup>, поверхность которых предварительно подвергалась пескоструйной обработке. Порошковые покрытия осаждались в воздушной среде со следующими параметрами импульсно-плазменной обработки: расстояние от подложки до среза сопла установки 60 мм; скорость перемещения образца 360 мм/мин., расход порошка 21,6 г/мин., частота следования импульсов 4 Гц (частота детонации). Мощность плазменной струи 5 МВт, средний диаметр струи на образце 25 мм, длительность импульса 3 мкс. Эродирующий электрод Mo.

Для оплавления покрытий использовали повторные проходы плазменной струи без порошка покрытия в воздушной среде и облучение образцов в вакууме сильноточным электронным пучком на источнике «У-212». Нанесение покрытий и их модификация проведены в Сумском институте модификации поверхности (Сумы, Украина).

В качестве основных методов структурного исследования были использованы: рентгенографический фазовый структурный анализ (РФСА), сканирующая электронная микроскопия, просвечивающая электронная микроскопия (ПЭМ) и атомно-силовая микроскопия (АСМ). Топографию поверхности покрытий исследовали на атомно-силовом микроскопе JSPM-5200 («JEOL», Япония) и NT-206 (Белоруссия). Шероховатость поверхности оценивали согласно ГОСТ 2789-7, сравнивая  $Ra$  - среднее арифметическое отклонение профиля для покрытий до и после модификации облучением. Исследования структуры поверхности и морфологии проводили методами сканирующей (растровой) электронной микроскопии (РЭМ) на JSM-6390LV («JEOL», Япония) с приставкой энергодисперсионного анализа INCA ENERGY («Oxford Instruments», Великобритания). Для изучения структурно-фазового состава покрытий и подложек применяли рентгеновский дифрактометр X'Pert PRO («PANalytical», Нидерланды). Для более детального анализа покрытий, нанесенных плазменно-детонационным методом, их механически срезали с поверхности подложки и исследовали структуру и состав с 2-ух сторон: со стороны поверхности и со стороны, примыкающей к подложке. Методами ПЭМ по стандартным методикам, проводили исследования покрытий на JEM-2100 («JEOL», Япония) при ускоряющем напряжении 200 кВ. Исследовали фольги из покрытий, предварительно механически утоненные и протравленные арговыми пучками в вакууме до образования сквозного отверстия на установке PIPS (Gatan, США) с энергией пучка 5 кэВ. Испытания на микротвердость всех образцов проводили на приборе ПМТ-3.

Результаты и их обсуждение

Поверхность плазменно-детонационных покрытий представляет собой неоднородный по высоте слой со средним значением параметров шероховатости  $Ra = 100,0$  нм для АН-35 (рис.1 а), 121,6 нм для ПГ-19Н-01 (рис.1б) и 95,0 нм для ПГ-10Н-01 (рис.1 в).

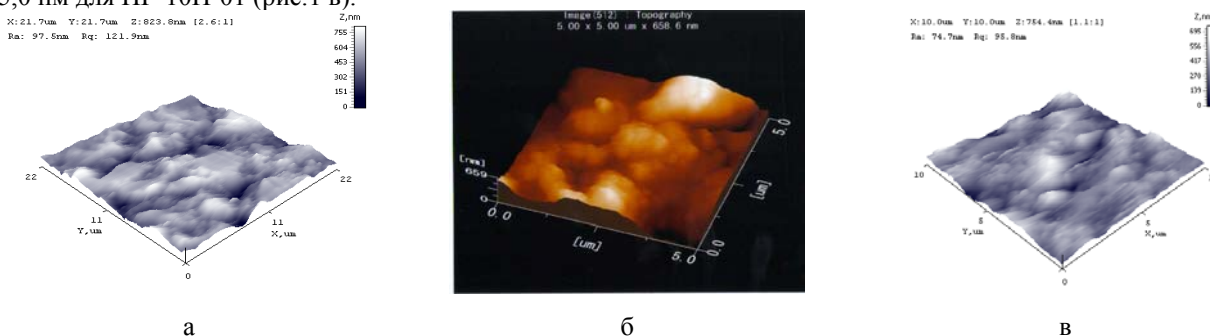


Рисунок. 1. Топография поверхности плазменно-детонационных покрытий из АН-35 (а) , ПГ-19Н-01 (б) и ПГ-10Н-01 (в)

Для детального анализа тонкой структуры покрытий применяли исследование методами ПЭМ и РФСА на разной глубине от поверхности (последовательное исследование), а так же измеряли микротвердость и размеры структурных единиц всех материалов покрытий и подложки на разной глубине от поверхности по косым шлифам.

Для основной толщи покрытий в целом характерно формирование  $\gamma$ -твердого раствора с ГЦК-решеткой на основе основной составляющей покрытия: Со или Ni, с выделением интерметаллидных фаз:  $Co_{0,8}Cr_{0,2}$  или  $CrNi_3$  соответственно (табл. 1).

Таблица 1. Фазовый состав покрытий на основе Ni-Cr и Co-Cr

Материал и место анализа	Объемный состав, %. Химическая формула. Тип кристаллической решетки. Пространственная группа. Параметры решетки, (Å).
Ni-Cr -основа	
Покрытие ПГ-19Н-01 0-50 мкм в глубину от поверхности	75 % - твердый раствор на основе Ni –ГЦК ( $\gamma$ -фаза), Fm3m, 225, $a=3,5350 - 3,5400$ 5 % - $Cr_{13}Ni_5Si_2$ – примитивная кубическая, P 213 (198), $a=6.1180(20)$ 15 % - $CrNi_3$ -ГЦК, Fm-3m, 225, $a=3,552$ 5 % -NiO - ГЦК, Fm-3m, 225, $a=4,2$
Покрытие ПГ-19Н-01 100 -150 мкм в глубину от поверхности	80 % - твердый раствор на основе Ni –ГЦК ( $\gamma$ -фаза), Fm3m, 225, $a=3,5250$ 10 % - $CrNi_3$ -ГЦК, Fm-3m, 225, $a=3,552$ 10 %- $Fe_7Ni_3$ – ОЦК, Im-3m, 229, $a=2,861$
Покрытие ПГ-10Н-01 0-50 мкм в глубину от поверхности	65 % - твердый раствор на основе Ni - ГЦК , Fm-3m (225), $a=3,59...3,60$ 15 % - $CrNi_3$ - ГЦК, Fm-3m (225), $a=3,5520$ 10% - $FeO Cr_2O_3$ – ГЦК , Fd-3m (227), $a=8,3440$ 10 % -NiO - ГЦК, Fm-3m, 225, $a=4,2$
Покрытие ПГ-10Н-01 100 -150 мкм в глубину от поверхности	70% -твердый раствор на основе Ni - ГЦК,Fm-3m (225), $a=3,57...3,58$ 15% - $CrNi_3$ - ГЦК, Fm-3m (225), $a=3,5520$ 15% - Fe Ni -Тетрагональная, P4/mmm (123), $a=3,5330$ ; $c=3,5820$
Co-Cr -основа	
Покрытие АН-35 0-50 мкм в глубину от поверхности	60% -твердый раствор на основе Со, ГЦК, Fm-3m (225), $a=3,55...3,54$ 15% - $Co_{0,8}Cr_{0,2}$ - гексагональная, P63/mmc (194), $a=2,52$ ; $c=4,062$ 10% - $Fe Cr_2 O_4$ - ГЦК, Fm-3m (225), $a=8,3780$ 15%- $NiCr_2 O_4$ -ГЦК, Fm-3m (225), $a=8,2990$
Покрытие АН-35 100 -150 мкм в глубину от поверхности	50% -твердый раствор на основе Со, ГЦК, Fm-3m (225), $a=3,52...3,53$ 15% - $Co_{0,8}Cr_{0,2}$ – гексагональная, P63/mmc (194), $a=2,52$ ; $c=4,062$ 35% - CoFe- примитивная кубическая, Pm-3m (221), $a=2,8570$

Из данных эксперимента по послойному анализу очевидно различие по глубине в структурно-фазовом составе покрытий. В процессе нанесения методом плазменной детонации происходит плавление и дробление при ударе о подложку частиц порошка, растворение фаз-примесей и формирование из расплава твердого  $\gamma$ - раствора, и его распад. Параметр решетки  $\gamma$  -твердого раствора в данных покрытиях уменьшается по глубине от поверхности и формируется диффузная зона с повышенной по сравнению с подложкой микротвердостью и большим количеством фаз на основе Fe

в контактом с подложкой слое. Подложка представляет  $\alpha$ -Fe с ОЦК-решеткой с параметром  $a=2,8662 \text{ \AA}$ . Ширина диффузной зоны оценивается величиной порядка 100 мкм. На поверхности покрытий наблюдается тонкий слой (не более 5 мкм толщиной) с аморфизированной структурой твердого раствора, с оксидами и карбидами (толщина и состав тонкого поверхностного слоя установлен методами скользящего рентгеновского пучка и электронно-химического спектрального анализа со стравливанием верхнего слоя покрытия ионами Ag).

Методами ПЭМ установлено, что  $\gamma$ -твердый раствор в покрытиях ПГ-19Н-01 и АН-35 сформирован нанозернами различной кристаллографической ориентации (рис. 2а), а морфология выделения интерметаллидных фаз пластинчатая (рис. 2в). На рентгеновских дифрактограммах и на кольцевых микроэлектроннограммах  $\gamma$ -фазы отмечается текстура с осью зоны типа  $\langle 111 \rangle$  (рис. 2б). В контактом с подложкой слое обоих покрытий наблюдаются дефекты структуры (рис. 1в), обусловленные деформацией.

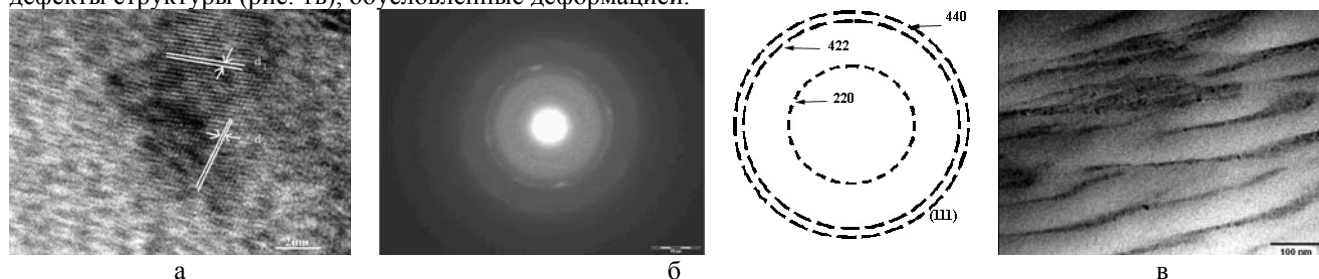


Рисунок 2 - ПЭМ-изображения и картины микродифракции плазменно-детонационных покрытий: нанозерна с различной кристаллографической ориентацией в ПГ-19Н-01 (а); микроэлектроннограмма покрытия из АН-35 и схема, поясняющая формирование текстуры с осью зоны типа  $\langle 111 \rangle$  (б); дефекты микроструктуры в контактом с подложкой слое покрытия из ПГ-19Н-01 (в)

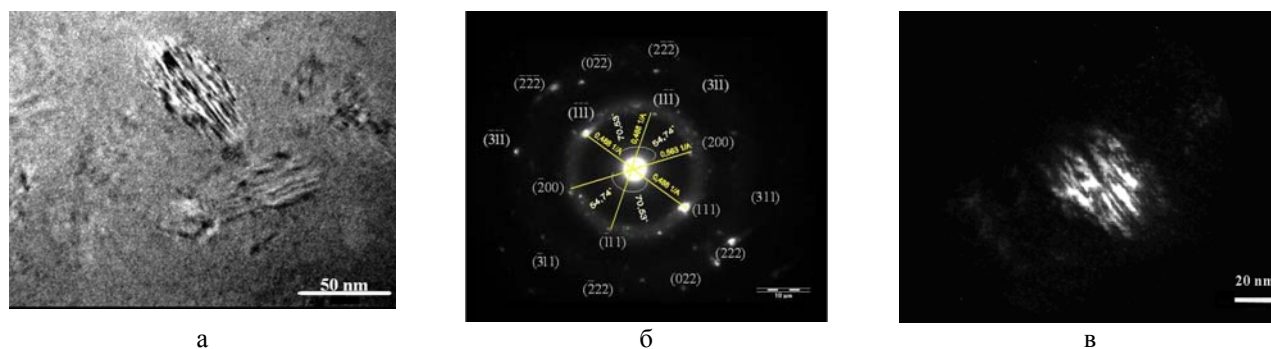


Рисунок 3 - ПЭМ-изображения и картина микродифракции покрытия из ПГ-19Н-01: частицы  $\text{CrNi}_3$ , светлое поле (а); микроэлектроннограмма частиц  $\text{CrNi}_3$ , ось зоны  $[011]$  (б); частицы  $\text{CrNi}_3$  (темное поле), снятые в рефлексе  $(111)$

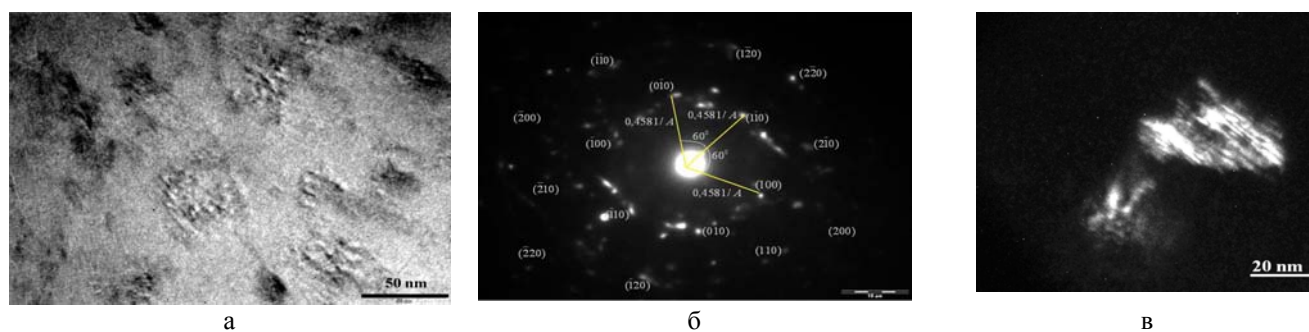


Рисунок 4 - ПЭМ-изображения и картина микродифракции покрытия из АН-35: частицы  $\text{Co}_{0.8}\text{C}_{0.2}$ , светлое поле (а); микроэлектроннограмма частиц  $\text{Co}_{0.8}\text{C}_{0.2}$ , ось зоны  $[001]$  (б) частицы  $\text{Co}_{0.8}\text{C}_{0.2}$  (темное поле), снятые в рефлексе  $(1\bar{1}0)$

Области распада твердого раствора представляют собой ламели длиной от 30 нм до 50 нм интерметаллидной фазы  $\text{Co}_{0.8}\text{Cr}_{0.2}$  с гексагональной решеткой в АН-35 или  $\text{CrNi}_3$  с ГЦК-решеткой в ПГ-19Н-01. Параметры кристаллической решетки данных фаз и твердого раствора, установленные по расшифровке микроэлектроннограмм, фактически совпадают со значениями, указанными в таблице 1 для данных покрытий. Каждый индицированный рефлекс интерметаллидной фазы на микроэлектроннограммах проверялся методом темного поля. Объемная доля интерметаллидных фаз неодинакова по толщине покрытия, как установлено методами РФСА и ПЭМ (рис.5) Наблюдается неоднородное распределение микротвердости по глубине покрытия. Максимальные значения микротвердости соответствуют участкам покрытия с наибольшей объемной долей отмеченных интерметаллидных фаз (рис.5).



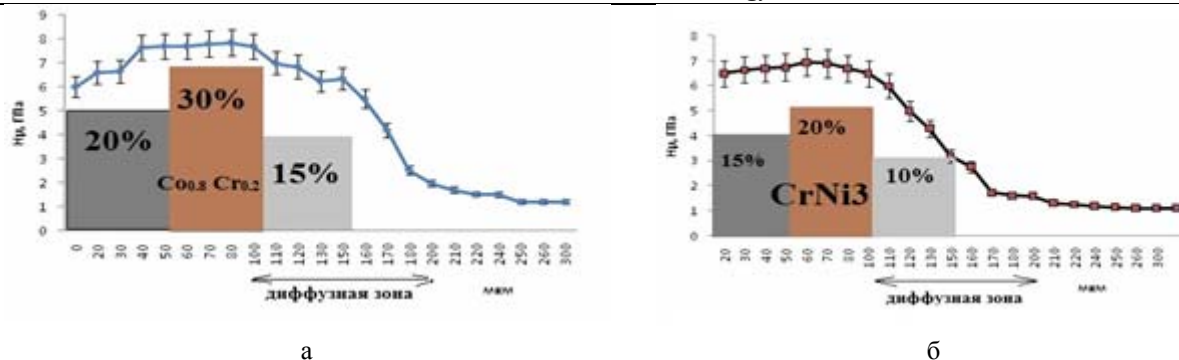


Рисунок 5 - Распределение микротвердости  $H_v$  по глубине от поверхности с указанием содержания объемной доли интерметаллидной фазы для покрытия из АН-35 (а); для покрытия из ПГ-19Н-01 (б)

Анализ структурно-фазового состояния покрытий на основе Ni-Cr методами АСМ, ПЭМ РЭМ и рентгеноструктурного фазового анализа позволил сделать предположение о послойной (зонной) структуре покрытия и предложить модель строения покрытий, нанесенных методом плазменной детонации на стальные подложки. На рис. 7 приводится разработанная нами схема строения плазменно-детонационного порошкового покрытия.

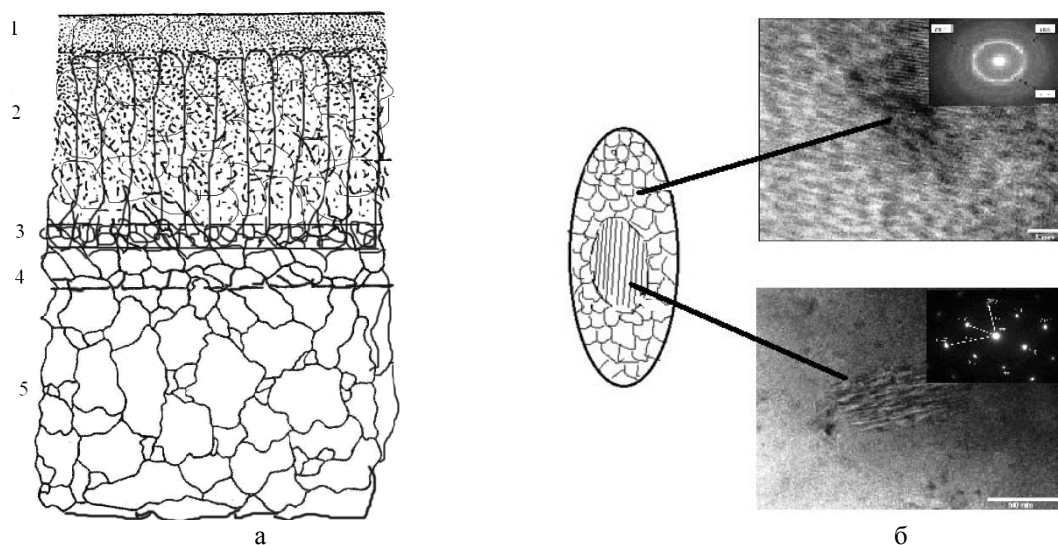


Рисунок 6 - Схематическое изображение строения покрытий, нанесенных методом плазменной детонации на стальную подложку: 1- аморфный слой с оксидами, карбидами и повышенным содержанием элементов покрытия, плохо растворимыми при высоких температурах; 2- текстурированная матрица покрытия (твердый раствор на основе главной составляющей покрытия с выделением интерметаллидных фаз) и нерасплавленные частицы порошка покрытия, 3 – переходный слой от покрытия к подложке, с областями деформации в покрытии, с мелко раздробленными частицами порошка, 4 - переходный слой с измельченными зернами подложки, 5 – подложка. Штрихами в зернах показаны области распада твердого раствора с выделением ламелей интерметаллидных фаз. Рисунок 6б поясняет строение зерна покрытия и иллюстрирует выделение интерметаллидных фаз

Первая зона – поверхность покрытия, характеризуется аморфизацией твердого раствора и наличием оксидов.

Толщина второй зоны фактически совпадает с толщиной покрытия. Внутри вытянутых зерен наблюдается структура из кристаллографически разориентированных нанозерен (рис. 6 б) и образуются области упорядоченного твердого раствора размерами 50 нм, внутри которых происходит распад твердого раствора с выделением ламелей интерметаллидных фаз. В основном структура покрытий нанокристаллическая по всей толщине с объемной долей порядка 20 - 30% наноразмерных ламелей интерметаллидных фаз. Причина формирования разориентированных нанозерен - высокая дефектность микроструктуры, обусловленная деформацией из-за ударного воздействия плазменной струи на поверхность и резкого градиента температуры в покрытии. Для релаксации механических напряжений в покрытии формируется субструктура из нанозерен различной кристаллографической ориентации. Формируется субструктура, сходная с фрагментированной, с разориентацией фрагментов – нанозерен, аналогичной наблюдаемой при полигонизации кристаллов. Сформировавшиеся наноструктуры устойчивы при комнатных температурах, наблюдаются в фольгах покрытий, нанесенных несколько месяцев и даже лет назад, снижения прочностных свойств покрытий со временем так же не наблюдается. Ширина этой зоны составляет 100-150 мкм. На кольцевых микроэлектроннограммах этих областей при падении электронного пучка нормально к поверхности покрытия отмечается различимая текстура, с осью зоны типа  $\langle 111 \rangle$ , соответствующая волокнистой текстуре роста зерен вдоль теплового потока в покрытии. В силу хаотичного расположения кристаллитов относительно друг друга в мелкодисперсных агрегатах, на кольцевой микродифракционной картине есть все кольцевые рефлексии, характерные

для ГЦК-кристаллической решетки, но кольцевые рефлексы плоскостей (220), (422), (440), принадлежащие текстуре с осью зона типа <111> обладают большей интенсивностью (рис. 2 б)

Третья зона (3 и 4 на рис. 6) является переходной (диффузной) зоной. Она характеризуется дефектами в материале покрытия (обнаружены методами ПЭМ), мелкозернистой структурой стали подложки (измельчение зерен от 30 до 7 мкм за счет деформации при ударе порошка покрытия о поверхность и последующего быстрого нагрева и охлаждения) и началом развития текстуры по отношению к исходной структуре материала. Структурно-фазовый состав данной области представляет смену твердого раствора на основе материала покрытия на твердый раствор на основе железа с ОЦК - структурой. Предполагается диффузия основных составляющих элементов покрытия (Ni или Co, соответственно) в подложку и Fe из подложки в покрытие. Ширина диффузной зоны оценивается в среднем в 100 мкм: 50 мкм – в покрытии и 50 мкм в подложке. За счет существенной толщины покрытия (150-300 мкм) отсутствует проблема сопряжения высокопрочной и хрупкой поверхностной пленки с основным объемом материала, обладающим более низкой прочностью и высокой пластичностью. Процесс деформации идет на одном структурном уровне по всему объему покрытия и переходного к подложке слоя.

**Вывод.** Данная модель может быть применена к широкому классу покрытий на основе Ni-Cr и Co- Cr, а ее прикладное значение в том, что она может быть использована для расчетов режимов дополнительного облучения при модификации покрытий.

#### **Литература**

1. Кадыржанов К.К., Комаров Ф.Ф., Погребняк А.Д., Русаков В.С., Туркебаев Т.Э. Ионно-лучевая и ионно-плазменная модификация материалов.- Москва: МГУ, 2005.-639с.

## **МОДИФИЦИРОВАНИЕ ТВЕРДОКИСЛИДНЫХ ПРОТОННЫХ ПРОВОДНИКОВ ИОНАМИ КИСЛОРОДА И АРГОНА**

Хромушин И.В., Аксенова Т.И., Мунасбаева К.К., Жотабаев Ж.Р.,  
Тусеев Т.Т., Дегтярев В.В., Русакова А.В.  
*Институт ядерной физики Национальный ядерный центр РК  
г. Алматы, Казахстан*

**Введение.** При исследовании  $ABO_3$  перовскитов, обладающих свойством протонной проводимости и перспективных для водородной энергетики, значительное внимание уделяется поиску и синтезу новых составов, которые позволили бы существенно повысить эффективность топливных элементов и снизить себестоимость получаемой электроэнергии. Однако возможности данного направления не безграничны и, можно сказать, уже исчерпаны [1]. Поэтому интерес представляет развитие нового пути улучшения свойств протонных проводников – это их радиационное модифицирование. Данный вопрос в мировой литературе в настоящее время освещен слабо, и можно назвать только одну группу японских ученых, которые работают в этом направлении [2,3].

Исходные перовскиты со структурой  $ABO_3$ , например, бариевые и стронциевые цераты ( $BaCeO_3$  и  $SrCeO_3$ ), не являются протонными проводниками. Для проявления протонной проводимости осуществляют катионное допирование этих материалов трехвалентными редкоземельными металлами, например  $Nd^{3+}$  или  $Y^{3+}$ , которые частично замещают четырехвалентный катион, в данном случае, церий  $Ce^{4+}$ . Это приводит к образованию соединения типа  $BaCe_{1-x}Nd_xO_{3-x/2}$ , где  $x$  – концентрация допанта. Процесс допирования сопровождается образованием кислородных вакансий  $V^{\bullet\bullet}$  с эффективным зарядом +2 и концентрацией  $\alpha=x/2$ . При определенных условиях данные вакансии заполняются гидроксильными группами, и водород, диффундируя по ионам кислорода, обуславливает появление свойств протонной проводимости. Такой традиционный способ получения протонных проводников, хотя и применяется успешно, имеет ряд недостатков, обусловленных, главным образом, искажением решетки за счет различия ионных радиусов катионов «хозяина» и допанта и их электронных структур. Разработка технологий синтеза материалов со свойством протонной проводимости путем понижения степени окисления иона церия от  $Ce^{4+}$  до  $Ce^{3+}$  без использования примесных атомов допанта позволила бы минимизировать искажения электронной и ионной структур и улучшить протон-проводящие свойства материалов.

С этой целью проведены исследования влияния высокоэнергетичных заряженных частиц кислорода и аргона с энергией 40 кэВ и 70 МэВ, соответственно, на структуру и свойства оксидных протонных проводников на основе церата бария.

**Методика эксперимента.** Исследуемые образцы церата бария  $BaCe_{1-x}Nd_xO_{3-x/2}$ , допированного неодимом ( $x=15\%$ ), вырезали в виде плоских пластинок размером 10x3x1 мм, которые затем тщательно шлифовали и отжигали на воздухе при температуре 650°C в течение 7 часов. Облучение ионами проводили на ускорителе ДС-60, г. Астана. Исходные и облученные образцы подвергали исследованиям различными методами.

Контроль состояния поверхности протонных проводников и их стехиометрии осуществляли методом растровой электронной микроскопии на микроскопе JSM – 7500F (JEOL) с рентгеновским микроанализом элементного состава.

Рентгенофазовый анализ проводили на дифрактометре D8 ADVANCE. Использовали излучение рентгеновской трубки с Cu – анодом и графитовый монохроматор на дифрагированном пучке. Для уменьшения фона от держателя

образца дифрактограмма записывалась в режиме автоматического регулирования угла расхождения первичного пучка. Были выполнены исследования необлученной и облученной поверхностей образцов.

Изучение форм локализации протонов, а также присутствие примесных фаз и адсорбированных молекул на поверхности церата проводили методом инфракрасной спектроскопии на инфракрасном Фурье спектрометре IA-Prestige-21 производства Японии в диапазоне частот 380-5000см<sup>-1</sup>.

Исследования процессов десорбции газов из церата бария проводили на термодесорбционном спектрометре при рабочем вакууме ~10<sup>-8</sup> мм.рт.ст. Принципиальная схема установки и методика регистрации термодесорбционных спектров подробно описана ранее [4].

Расчеты профилей распределения имплантированных ионов, дефектов образованных в процессе облучения, и определение коэффициентов распыления компонент материала выполняли с использованием программы SRIM-2011.

**Результаты эксперимента.** Рентгенофазовый анализ керамического церата бария показал, что синтезированные образцы имеют структуру перовскита и фазовый состав, соответствующий формуле BaCeO<sub>3</sub>. Методом растровой электронной микроскопии обнаружено, что поверхность исходной керамики представляет собой неоднородную структуру, состоящую из крупных блоков и мелкозернистых участков темно-серого цвета. Рис.1 (а). На основе данных рентгеновского микроанализа элементного состава отдельных участков поверхности церата выполнены расчеты стехиометрии этих участков. В качестве примера в таблице 1 представлен измеренный состав поверхности керамики в указанных точках и рассчитанная в них стехиометрия.

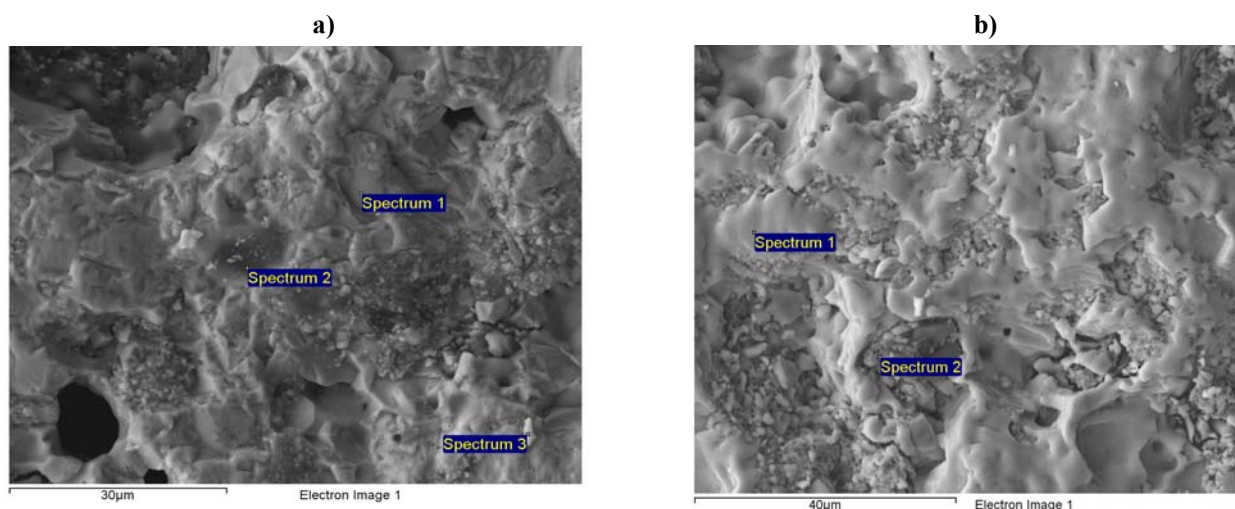


Рис. 1 - Электронно-микроскопический снимок поверхности исходного (а) и облученного ионами кислорода (b) церата бария

Таблица 1 - Элементный состав и стехиометрия необлученной керамики

Элемент	C	O	Si	Ba	Ce	Nd	Всего	Стехиометрический состав
Spectrum 1	-	14.05	0.91	43.28	36.88	4.88	100	BaCe <sub>0.835</sub> Nd <sub>0.107</sub> O <sub>2.786</sub>
Spectrum 2	18.11	4.51	0.85	40.40	36.12	-	100	BaCe <sub>0.876</sub> Nd <sub>0.0958</sub>
Spectrum 3	2.88	20.81	1.20	39.98	29.27	5.86	100	BaCe <sub>0.717</sub> Nd <sub>0.139</sub> O <sub>4.468</sub>

Анализ полученных результатов позволил сделать вывод, что хотя доминирующими на поверхности необлученного церата являются участки с ненарушенной стехиометрией (~BaCe<sub>0.835</sub>Nd<sub>0.107</sub>O<sub>2.786</sub>), в то же время следует отметить наличие включений, характеризующихся значительными отклонениями от начальной стехиометрии. Такие отклонения могут быть обусловлены различием состава в теле зерна и на его границах, что, по-видимому, является неустраняемыми издержками керамической технологии синтеза этих материалов

Облучение церата бария ионами кислорода не вызывает заметных структурных изменений согласно данным рентгенофазового анализа. Хотя однозначно сделать такой вывод затруднительно из-за малой толщины поврежденного облучением слоя. Глубина поврежденного слоя для ионов кислорода, определенная из профилей распределения имплантированных ионов и вакансий, образованных в процессе облучения, рассчитанных с

использованием программы SRIM-2011, составила 673 Å. Также были определены коэффициенты распыления компонент материала. В качестве примера на рис. 2, 3 приведены некоторые результаты расчетов для случая облучения бариевого церата ионами кислорода с энергией 40 кэВ.

Исследования облученного церата, проведенные с помощью растровой электронной микроскопии, показали, что после облучения наблюдается оплавление поверхности керамики (рис.1.(b)). Кроме того, установлено, что при облучении ионами кислорода (флюенс 10<sup>18</sup> ион/см<sup>2</sup>) его концентрация в облученном слое оказалась выше стехиометрической, но значительно ниже ожидаемой, что, по-видимому, обусловлено выходом кислорода из образца и распылением поверхности в процессе облучения.



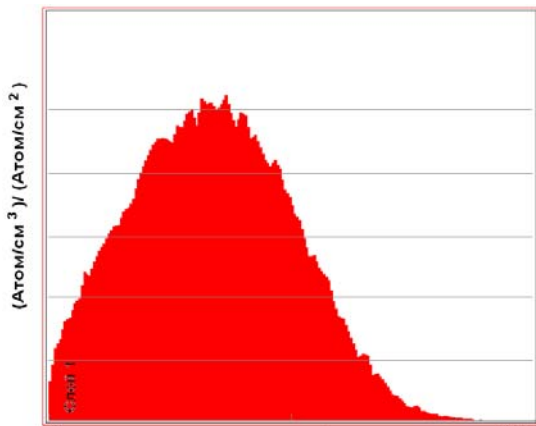


Рис. 2 - Результат расчета профиля распределения кислорода с энергией 40 кэВ, имплантированного в бариевый церат

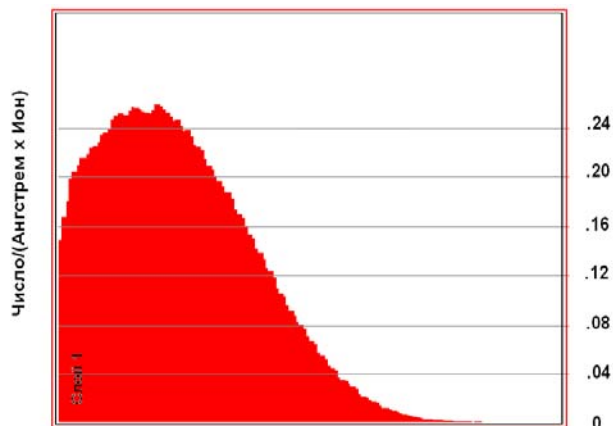


Рис. 3 - Профиль распределения концентрации вакансий по глубине при облучении бариевого церата ионами кислорода с энергией 40 кэВ

Облучение церата бария ионами аргона флюенсом  $10^{16}$  ион/см<sup>2</sup> приводит к существенному изменению его структуры. Обнаружено, что поверхность церата бария со стороны облучения претерпевает аморфизацию. Рис. 4.

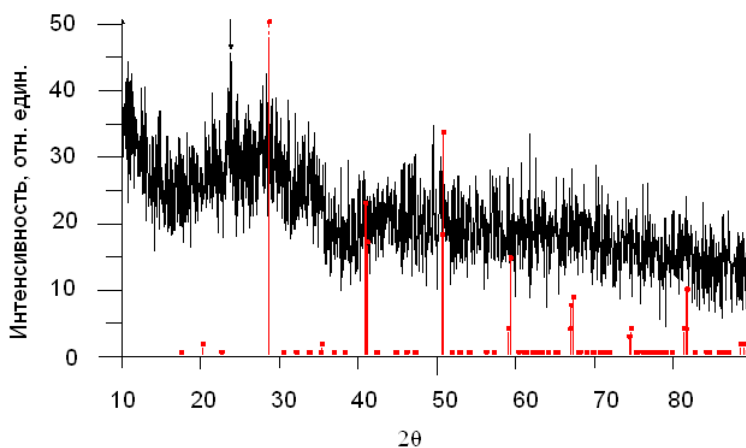


Рис.4 - Дифрактограммы облученной ионами аргона поверхности церата бария

Необлученная сторона церата бария сохраняет перовскитную структуру независимо от флюенса облучения. Наряду с изменением структуры церата обнаружено изменение оптических свойств материала, что проявляется в изменении цвета керамики с черного на серо-зеленый. Несмотря на то, что пробег ионов аргона в данных материалах составляет чуть более 20 мкм, цвет изменял весь образец толщиной порядка 2 мм. Рис. 5 (a, b).



Рис. 5 - Оптические снимки поверхности церата бария: необлученной (a) и облученной ионами аргона (b); (c) – исходный образец

Изучено состояние поверхности облученных цератов с помощью оптической микроскопии и также выявлены существенные изменения. Как уже отмечалось ранее, после бомбардировки ионами кислорода на облученной

поверхности образцов наблюдаются блестящие оплавленные участки. В случае же облучения ионами аргона наряду с изменением цвета образцов имело место проявление ячеистой структуры облученной поверхности. Рис. 5 (b).

Обнаруженный эффект “дальнодействия”, по-видимому, обусловлен изменением электронной структуры бариевых цератов при облучении ионами аргона высоких энергий. Можно ожидать, что если снять облученный слой, например, методом полировки, то оставшаяся часть образца, не подверженная прямому воздействию облучения, имея одинаковую структуру и состав, как у исходного материала, будет иметь отличную от него электронную структуру.

Термодесорбционные исследования цератов показали, что состояния газовых компонент в данных материалах (вода, кислород) после облучения ионами кислорода практически не изменились, о чем свидетельствует идентичность спектров термодесорбции  $H_2O$  и  $O_2$  как по температурному диапазону выхода газов, так и по форме их спектров (рис.6). В то же время имеет место некоторое увеличение концентрации десорбированных молекул воды и кислорода, что можно рассматривать как подтверждение высказанного нами предположения о возможности понижения степени окисления церия от  $Ce^{4+}$  до  $Ce^{3+}$  при облучении.

Облучение церата бария ионами аргона приводит к существенной трансформации спектров выделения молекул кислорода и воды (рисунок 6 (a) и (b)). Прежде всего, следует отметить тот факт, что на облученных образцах вообще не наблюдается выход кислорода, что само по себе является странным, поскольку пробег ионов аргона в этих материалах согласно выполненным расчетам составляет примерно 20 мкм, тогда как толщина образца около 2 мм. Это является доказательством того, что обнаруженный эффект “дальнодействия” проявляется не только в изменении цвета образца, но и в изменении состояния кислорода в этих материалах.

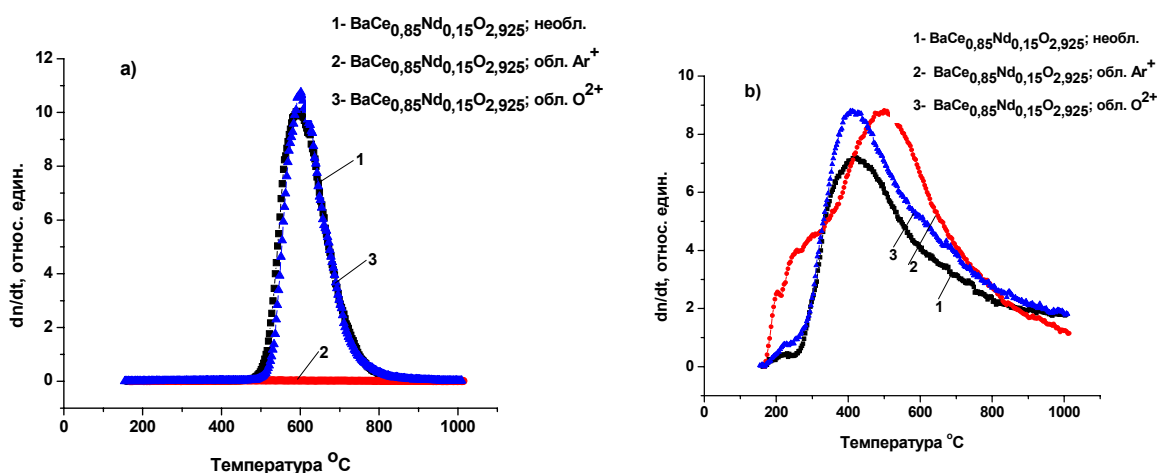


Рис. 6 - Спектры термодесорбции молекул кислорода (a) и воды (b) из образцов церата бария исходного (отжиг при  $650^\circ C$ ) и после облучения ионами кислорода флюенсом  $10^{18}$  ион/ $cm^2$  и ионами аргона флюенсом  $10^{16}$  ион/ $cm^2$

Традиционно выход сверхстехиометрического кислорода связывали со смешанной протон-кислородной проводимостью бариевых цератов. Таким образом, наблюдаемый нами эффект “дальнодействия” приводит не только к изменению оптических свойств этих материалов, но, по-видимому, и к смене их типа проводимости от смешанной к чисто протонной. Отметим, что выхода кислорода из допированных стронциевых цератов, обладающих чисто протонной проводимостью, не наблюдается.

Следует отметить, что в спектрах выделения воды из образцов, облученных ионами аргона, наблюдается рост выхода в низкотемпературной области и смещение максимума основного пика воды в сторону более высоких температур.

Выполнены ИК-спектроскопические исследования облученных образцов церата бария, которые не выявили существенного влияния облучения на оптические свойства цератов. В то же время при облучении, как ионами аргона, так и кислорода наблюдалось увеличение интенсивностей полос поглощения в области  $3600-3800\text{ см}^{-1}$ , обусловленных валентными колебаниями изолированных ОН-групп. Это может быть связано с дополнительной сорбцией атмосферной влаги на поверхности церата бария, активированной облучением. Наряду с этим в ИК-спектрах, облученных ионами аргона цератах, наблюдается увеличение интенсивности полос поглощения  $1450\text{ см}^{-1}$ ,  $1590\text{ см}^{-1}$ , происхождение которых может быть обусловлено, как деформационными колебаниями гидроксильных групп, так и колебаниями карбонатных структур.

**Заключение.** Выполнены исследования по влиянию облучения ионами кислорода и аргона на структуру и свойства бариевых цератов. Подтверждена возможность изменения валентности церия от  $Ce^{4+}$  до  $Ce^{3+}$  при облучении данных материалов ионами кислорода низких энергий. Обнаружен эффект “дальнодействия” при облучении протонных проводников ионами аргона высоких энергий, проявляющийся в изменении цвета образца на расстояниях, во много раз превышающих пробег ионов в этих материалах. Установлено, что изменение цвета облученных образцов обусловлено изменением их прозрачности в диапазоне 300-600 нм. Наряду с этим сделано предположение об изменении типа проводимости этих материалов от смешанной протон-кислородной до чисто протонной проводимости. Таким образом, показано, что, варьируя условия облучения, можно синтезировать материалы с новыми свойствами.

Выражаем благодарность сотрудникам Аналитического центра Антонию В.И. и Слюсареву А.П. за рентгенофазовые исследования.

#### **Литература**

1. Jae-Hwan Kim, Bun Tsuchiya, Shinji Nagata, Tasuo Shikama, Solid State Ionics 179 (2008) 1182-1186.
2. B. Tsuchiya, A. Morono, E.R. Hodgson, S. Nagata, T. Shikama, Solid State Ionics 179 (2008) 909-912.
3. B. Tsuchiya, y. Konishi, S. Nagata, T. Shikama, Solid State Ionics 179 (2008) 1128-1132.
4. T.I. Aksenova, I.V. Khromushin, Zh.R. Zhotabaev, K.D. Bukenov, A.K. Berdauletov, Z.V. Medvedeva, Solid State Ionics 162-163 (2003) 31-36.

## **НЕЙТРОДИФРАКЦИОННОЕ ИЗУЧЕНИЕ ЯВЛЕНИЙ САМОЗАЛЕЧИВАНИЯ И САМОКРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПРОДУКТОВ ДЕГИДРИРОВАНИЯ ТРИГИДРОКСИДОВ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ**

И. Хидиров

*Институт ядерной физики АН РУз, 100214, Ташкент, Узбекистан, e-mail: khidirov@inp.uz*

### **ВВЕДЕНИЕ**

В работе [1] было сообщено о получении методом термоэмиссии водорода мета-стабильного порошкового кристалла “тригидроксида”  $R[O_3]$  ( $R-La, Pr, Nd$ ) типа радикала, то есть “триоксида” с разорванными химическими связями и не-спаренными электронами. Термоэмиссией водорода назовем частичное или полное удаление водорода из кристаллической решетки водородсодержащего порошкообразного кристалла без изменения симметрии кристалла в непрерывно откачиваемом высоком вакууме при температуре ниже температуры рекристаллизации  $T_{рекр}$  или распада ( $T_{расп.}$ ) данного соединения:  $T_{эв} < T_{рекр} < T_{расп.}$  [2]. При этом атомы водорода, имеющие малый атомный вес, низкую энергию связи и высокую скорость диффузии покидают решетку, а конфигурация относительно тяжелых атомов (стабилизированная ранее атомами водорода) из-за их недостаточной диффузионной подвижности при этой температуре, не может изменяться. Полученный таким способом «триоксид»  $Pr[O_3]$  имеет избыточный отрицательный заряд:  $Pr^{3+}[O_3]^{6-}$  [2]. Он стремится “захватить” еще три протона (водородного иона) при первой возможности. Очевидно, это вещество может быть устойчивым при низких температурах и в средах, которые не содержат водорода. В воздухе при комнатной температуре это вещество, взаимодействуя с молекулами воды, постепенно превращается опять в тригидроксид  $Pr(OH)_3$ , давая компенсацию лишнему отрицательному заряду тремя водородными атомами, захватывая их из молекул воды, отпуская молекулы кислорода. Об этом свидетельствовали съемка и расчеты нейтронограммы  $Pr[O_3]$ , снятой через 30 суток после получения и выдержанной в атмосферных условиях [2]. Другими словами, нейтронограмма образца  $Pr[O_3]$  после выдержки в атмосферных условиях в течение 30 суток, как качественная, так и количественная, становится идентичной с нейтронограммой  $Pr(OH)_3$ . Отсюда вытекает, что в атмосферных условиях происходит «самозалечивание»  $Pr[O_3]$  и восстановление  $Pr(OH)_3$ . Цель данной работы - изучение явлений термоэмиссии водорода в тригидроксидах редкоземельных металлов (РЗМ)  $R(OH)_3$ , ( $R-La, Pr, Nd$ ) и самозалечивания и самокристаллизации продуктов их дегидрирования.

### **МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА**

Исследуемые образцы получены в результате окисления на воздухе металлов  $La, Pr$  и  $Pr$  чистоты 99.95% при комнатной температуре. Полученные продукты представляли мелкодисперсный порошок и согласно рентгенофазовому анализу, полученные таким способом образцы содержали только соответствующие тригидроксида  $La, Pr$  и  $Nd$  с гексагональной структурой, описывающей в рамках пространственной группы (пр. гр.)  $6_3/m$ , что соответствует результатам работ [3, 4]. Нейтронограммы образцов снимали при комнатной температуре на нейтрон-ном дифрактометре, установленном на тепловой колонне ядерного реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУ ( $\lambda = 1.085 \text{ \AA}$ ). Дегидрирование образцов проводили в вакуумной печи типа СШВЛ-0.6.2/12. Обработка нейтронограмм образцов проводили методом Ритвелда полнопрофильного анализа нейтронограмм [5].

### **РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА И ОБСУЖДЕНИЕ**

На рис. 1а приведена нейтронограмма исходного образца  $Pr(OH)_3$ . Нейтронограммы тригидроксида  $La(OH)_3$  и  $Nd(OH)_3$  аналогичны с нейтронограммой образца  $Pr(OH)_3$ . Поскольку все тригидроксида РЗМ  $R(OH)_3$  имеют структурный тип  $UCl_3$  (пространственная группа – пр. гр.  $R6_3/m$ ) с близкими значениями параметров решетки [3], в дальнейшем для иллюстрации будем использовать нейтронограмму одного из них. На рис. 1а также представлена разность экспериментальных и расчетных интенсивностей дифракционных отражений на нейтронограмме  $Pr(OH)_3$  в рамках пр. гр.  $6_3/m$ . Нейтронограммам тригидроксида  $R(OH)_3$  характерно присутствие сильного некогерентного фона, спадающего с увеличением угла Вульфа–Брэгга (рис. 1 а, см. относительно горизонтальной штриховой линии). Согласно [6], именно только ядра водорода обуславливают сильный некогерентный фон, интенсивно спадающий с увеличением угла Вульфа–Брэгга из-за большой амплитуды некогерентного рассеяния нейтронов.

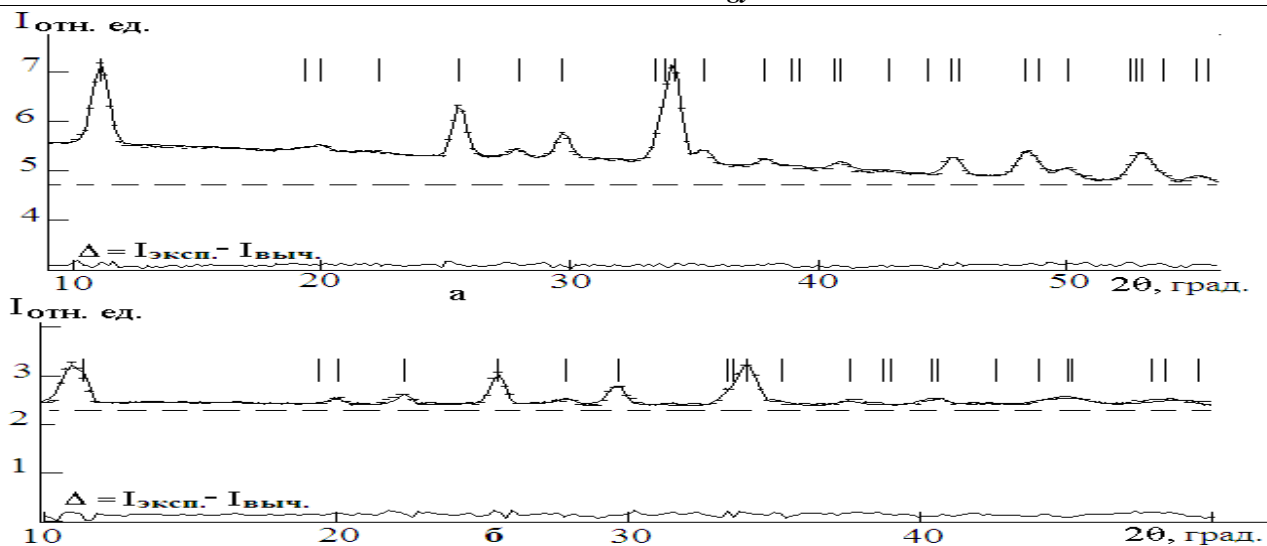


Рис. 1. Нейтронограммы: тригидроксида  $\text{Pr}(\text{OH})_3$  (а) и «триоксида»  $\text{Pr}[\text{O}_3]$  (б) (пр. гр.  $R_3/m$ ). Сплошная линия - расчетная; точки - экспериментально наблюдаемая;  $\Delta$  - разностная (экспериментальная минус расчетная). Над дифракционными максимумами указаны расчетные положения индексов отражающих плоскостей  $hkl$  в рамках пр.гр.  $R_3/m$ .

Эвакуацию водорода из решетки  $\text{R}(\text{OH})_3$  начинали с комнатной температуры через каждые 25 К в непрерывно откачиваемом высоком вакууме в печи. Время дегидрирования при каждой температуре сначала составляло 24 ч. При дегидрировании в рабочем объеме печи вакуум обеспечивался не хуже  $5.33 \times 10^{-3}$  Па в режиме непрерывной откачки. После дегидрирования при каждой температуре снимали нейтронограмму и качественно следили за содержанием водорода в образцах по спаду некогерентного фона на нейтронограммах, обуславливаемого некогерентным рассеянием нейтронов на ядрах водорода. Кроме того, контролировали путем анализа экспериментальных и расчетных интенсивностей дифракционных отражений на нейтронограммах методом Ритвелда полнопрофильного анализа дифрактограмм. Наконец, на нейтронограммах образцов, полученных путем непрерывной вакуумной откачки  $\text{R}(\text{OH})_3$  при температуре 400-420 К в течение не менее 16 ч (рис. 1б) отсутствовал некогерентный фон, спадающий с увеличением угла Вульфа-Брэгга (смотреть относительно горизонтальной штриховой линии на рис. 1б). Это первый признак отсутствия водорода в кристаллах. При этом прежние дифракционные отражения, соответствующие пр. гр.  $R_3/m$  наблюдаемые на нейтронограммах  $\text{R}(\text{OH})_3$ , сохранились, а их соотношение изменилось. Расчет нейтронограмм образцов после дегидрирования при 400-420 К методом полнопрофильного анализа Ритвелда показывает, что в образце водорода нет, а кристаллическая структура сохранилась (рис. 1б). Существенное уменьшение интенсивности дифракционных отражений на нейтронограммах после вакуумного дегидрирования объясняется, во-первых, отсутствием атомов водорода в решетке; во-вторых, меньшим валовым количеством дегидрированных образцов. Последнее обстоятельство связано с тем, что для ускорения процесса удаления водорода из порошков  $\text{R}(\text{OH})_3$  брали втрое меньше количество образцов, чем у исходных порошков  $\text{R}(\text{OH})_3$ . После удаления водорода наблюдаются расширение полуширины и искажение формы дифракционных максимумов, которые обусловлены сильным искажением кристаллической решетки после удаления из него водорода. Наилучшее согласие между экспериментальными и расчетными интенсивностями нейтронодифракционных отражений (рис. 1б) и минимальные факторы недостоверности определения структуры (R) могут быть получены только в предположении о том, что вещества являются «триоксидами», имеющими состав  $\text{R}[\text{O}_3]$ . Следует отметить, что температура эвакуации водорода из решетки всех триоксидов  $\text{R}(\text{OH})_3$  в пределах ошибок определения температуры ( $\Delta T = \pm 12$  К) практически одинакова. Это объясняется тем, что РЗМ La, Pr и Nd имеют сходное строение внешних электронных оболочек атомов и мало различаются по размерам атомов, а тригидроксиды  $\text{R}(\text{OH})_3$  имеют изоморфную структуру. Результаты расчета нейтронограммы  $\text{Pr}[\text{O}_3]$  в рамках пр. гр.  $R_3/m$  приведены в табл. 1.

Таблица 1

Структурные характеристики и факторы недостоверности R «триоксида»  $\text{Pr}[\text{O}_3]$  в рамках пр. гр.  $R_3/m$ .

Атом	Кол. ат.	Позиция	x	Y	z
Pr	2	2(d)	2/3	1/3	1/4
O	6	6(k)	0.376±0.002	0.461±0.002	1/4
$a = 0.658 \pm 0.018$ нм; $c = 0.381 \pm 0.006$ нм; R = 0.60 %; R = 0.81 %; R = 13,7%					

Обращают внимание большие ошибки в определении параметров решетки и большое значение  $R_{\text{бр}}$ . По-видимому, это обусловлено искажением формы пиков из-за сильных статических искажений решетки после удаления водорода. Образование такого соединения в системах R-O не соответствует закону о валентности. Кислород  $2^x$  – валентный, а РЗМ может быть  $3^x$  – или  $4^x$  –валентными. Но все они в  $\text{R}(\text{OH})_3$  являются трехвалентными. Очевидно, «триоксиды»  $\text{R}[\text{O}_3]$  имеет разорванные связи и неспаренные электроны, как у радикалов, а именно имеет избыточный отрицательный заряд:  $\text{R}^{3+}[\text{O}_3]^{6-}$ . Это вещество может быть устойчивым только при относительно низких температурах

и в средах, не содержащих водорода. Действительно, отжиг  $R[O_3]$  или дегидрирование  $R(OH)_3$  при температуре 420 К более 24 ч приводит к его аморфизации, о чем свидетельствует исчезновение селективных дифракционных отражений на нейтронограммах и появление слабого диффузного отражения при углах  $2\theta = 28 - 38$  градусов. Аналогичный случай имеет место также и при незначительном повышении температуры (до 450 К) (рис. 2). Но выдержка тригидроксида  $R(OH)_3$  или  $R[O_3]$  в непрерывно откачиваемом вакууме при температуре  $T \approx 470$  К приводит к улетучиванию как атомов водорода так и частично атомов кислорода, и при этом происходит рекристаллизация и образуется известная устойчивая двуокись  $RO_{2-x}$  с гранецентрированной кубической структурой (пр. гр. Fm3m, рис. 3).

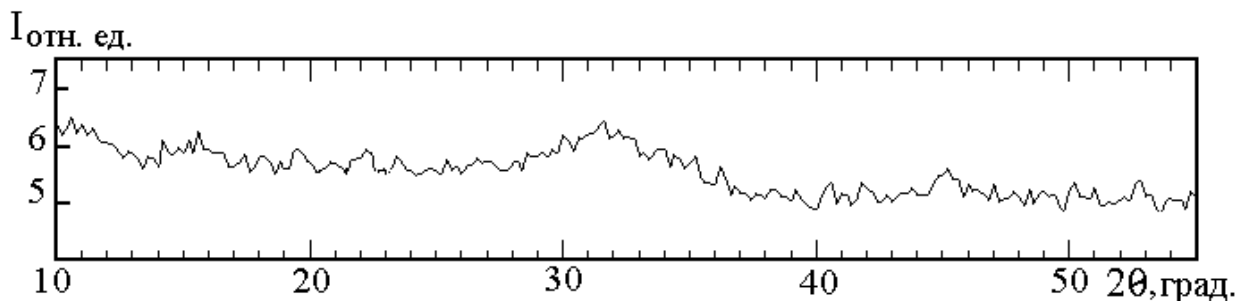


Рис. 2. Нейтронограмма аморфного  $Pr[O_3]$ .

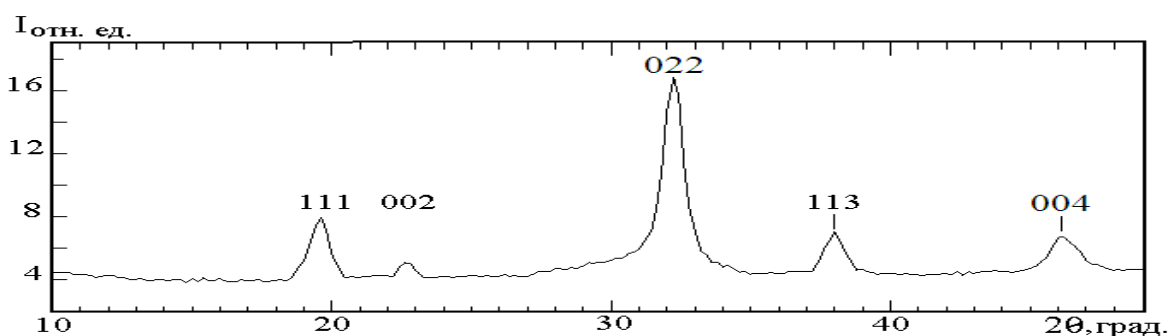
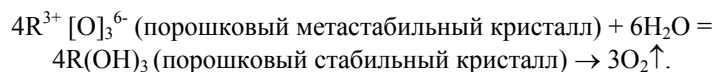


Рис. 3. Нейтронограмма кубической оксидной  $PrO_{2-x}$  – фазы. Над дифракционными максимумами указаны расчетные положения индексов отражающих плоскостей  $hkl$  в рамках пр. гр. Fm3m.

Полученный «триоксид»  $R[O_3]$  из-за не устойчивости в отношении валентности «стремится» захватить еще три протона. Это осуществляется за счет захвата в решетку трех ионов водорода при первой же возможности. Поэтому метастабильные «триоксиды» в атмосферных условиях, по всей видимости, взаимодействуя с молекулами воды, постепенно превращаются опять в тригидроксид  $R(OH)_3$ , компенсируя избыточный отрицательный заряд за счет трех атомов водорода. Об этом свидетельствуют расчеты нейтронограмм  $R[O_3]$ , снятых через 30 суток после получения и повторное появление некогерентного фона на нейтронограммах. Другими словами, нейтронограммы образцов  $R[O_3]$  после выдержки в атмосферных условиях при температуре 285 - 290 К (температура зала реактора в зимнее время) в течение 30 суток, как качественно, так и количественно, становятся идентичными с соответствующими нейтронограммами  $R(OH)_3$ . Отсюда вытекает, что в атмосферных условиях происходит «самозалечивание» «триоксида»  $R[O_3]$  до полного восстановления тригидроксида РЗМ  $R(OH)_3$ . (Очевидно, скорость этой реакции зависит от температуры). Поскольку на поверхности земли концентрация водорода весьма низка, то следует предположить, что  $R[O_3]$  захватывает водород, в основном, из паров воды в воздухе, отпуская молекулы кислорода:



Следовательно, «триоксид»  $R[O_3]$  в атмосферных условиях может быть одновременно поглотителем водорода и генератором кислорода. Израсходование (путем низкотемпературного удаления) водорода из  $4R(OH)_3$  опять приводит к восстановлению его свойства быть одновременно аккумулятором водорода и генератором кислорода в среде, содержащей молекулы воды. Описанный цикл можно осуществить многократно, который схематически изображен на рис. 4. Полезно сравнить скорости превращения триоксида  $R[O_3]$  и моногидроксида  $ROOH$  (кстати, полученного путем разложения  $R(OH)_3$  на воздухе при  $T \sim 670$  К [7]).  $ROOH$  даже при кратковременном контакте с воздухом при атмосферных условиях очень быстро переходит в тригидрооксид  $R(OH)_3$ , что обусловлено захватом моногидроксидом  $ROOH$  молекулы воды в воздухе без расщепления на атомы [7]. Можно предположить, что «триоксид»  $R[O_3]$  может «захватить» водород не только из паров воды, но также и из других водородсодержащих газов. Преимущество этого соединения перед другими водородопоглощающими материалами (например, титаном или интерметаллидами) заключается в том, что оно поглощает водород при малом парциальном давлении и низкой температуре без затраты энергии извне. Следовательно, оно также может быть использовано для удаления водорода из замкнутого объема.



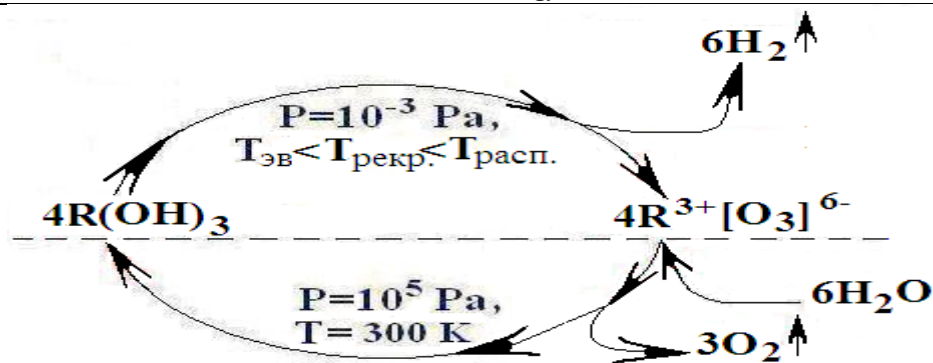


Рис. 4. Схема цикла получения «триоксида»  $R[O_3]$  из  $R(OH)_3$  в непрерывно откачиваемом высоком вакууме и повторного образования  $R(OH)_3$  из «триоксида»  $R[O_3]$  путем самозалечивания в атмосферных условиях.

Если  $R(OH)_3$  выдержать при температуре  $T \approx 420$  К меньше, чем 16 ч, то часть водорода в решетке остается, о чем свидетельствует сохранившийся некогерентный фон на нейтронограммах. Обработка нейтронограмм показывает, что в этих условиях образуется сильно нестехиометрический по водороду гидроксид  $R[O_3H_1]$ . Структурные характеристики и факторы недостоверности определения структуры для данного вещества на примере  $Pr[O_3H_1]$  приведены в табл. 2.

Таблица 2

Структурные характеристики и факторы недостоверности (R) нестехиометрического по водороду тригидроксида  $Pr[O_3H_1]$  в рамках пр. гр.  $b_3/m$ .

Атом	Кол. ат.	Позиция	x	y	z
Pr	2	2(d)	2/3	1/3	1/4
O	6	6(k)	$0.36 \pm 0.01$	$0.44 \pm 0.01$	1/4
H	1	6(k)	$0.16 \pm 0.09$	$0.40 \pm 0.09$	1/4
$a = 0.660 \pm 0.018$ нм; $c = 0.382 \pm 0.02$ нм; $R_{Rp} = 0.60$ %; $R_{wp} = 0.81$ %; $R_{Br} = 5,6$ %					

Выдержка данного нестехиометрического тригидроксида данного состава по водороду в атмосферных условиях в течение нескольких суток также приводит к его «самозалечиванию», то есть к восстановлению комплектного тригидроксида  $R(OH)_3$ .

В ходе экспериментов выяснилось, что аморфные  $R[O_3]$  в атмосферных условиях самопроизвольно кристаллизуются и превращаются в тригидроксид соответствующих редкоземельных металлов через 1-1.5 месяца при температуре зала реактора в зимнее время (285-290 К). Представлял интерес изучение кинетики этого процесса. Поэтому периодически переснимали нейтронограмму аморфного вещества  $La[O_3]$ . В это время измеряемый образец постоянно находился в ванадиевой цилиндрической кассете диаметром 6 мм, открытой сверху. На рис. 5 представлены некоторые характерные нейтронограммы, снятые в течение 50 суток. После эвакуации водорода из решетки  $La(OH)_3$  при температуре 420 К более 24 ч на нейтронограмме исчезают селективные отражения и появляются как слабые, так и относительно слабые диффузные отражения (рис. 5-1). В последующие 10 суток появляются слабые дифракционные максимумы при углах Вульфа-Брэгга  $2\theta = 15^\circ$  и  $19^\circ$ , а интенсивность диффузного отражения существенно растет (при углах  $2\theta = 24^\circ - 39^\circ$ , рис. 5-2 и 5-3). Через 15 суток на диффузных максимумах появляются слабые селективные отражения (рис. 5-4). Как показывает индицирование, положения этих пиков соответствуют гранцентрированной кубической оксидной  $La_2O_3$  - фазе (пр. гр. Fm3m). Следовательно, можно предположить, что в аморфной фазе сначала образуются зародыши гранцентрированной кубической оксидной фазы. В дальнейшем наблюдается рост интенсивности оксидной  $La_2O_3$  - фазы и уменьшение интенсивности диффузных отражений, что свидетельствует о росте образовавшейся оксидной фазы вместо аморфной фазы. Интересно, что на 5-й день после образования зародышей оксидной фазы ее рефлексы на нейтронограмме исчезают, но появляются небольшие некоторые дифракционные максимумы от тригидроксида лантана.

Действительно, согласно [3, 8], оксиды  $R_2O_3$ , поглощая влаги из воздуха, превращаются в тригидроксид  $R(OH)_3$ . В дальнейшем эти максимумы возрастают, а диффузные отражения ослабевают и исчезают (рис. 5-8, 5-9, 5-10). Вначале дифракционные пики от тригидроксида  $La(OH)_3$  сильно искажены, но постепенно приобретают совершенную форму. Таким образом, продолжительность процесса самопроизвольной кристаллизации и полного превращения аморфного вещества  $La[O_3]$  в  $La(OH)_3$  в атмосферных условиях при температурах 285-290 К составляет около 45-50 суток. Разумеется, скорость наблюдаемой реакции зависит от температуры и влажности воздуха. Для того, чтобы выяснить, насколько сильно заметна такая зависимость от температуры мы выдержали аморфное вещество  $La[O_3]$  в воздухе при температуре 340 К в течение 2 часа. Съемка нейтронограммы после этой выдержки показала, что аморфное вещество уже успело превратиться в плохо сформированный тригидроксид  $La(OH)_3$ .

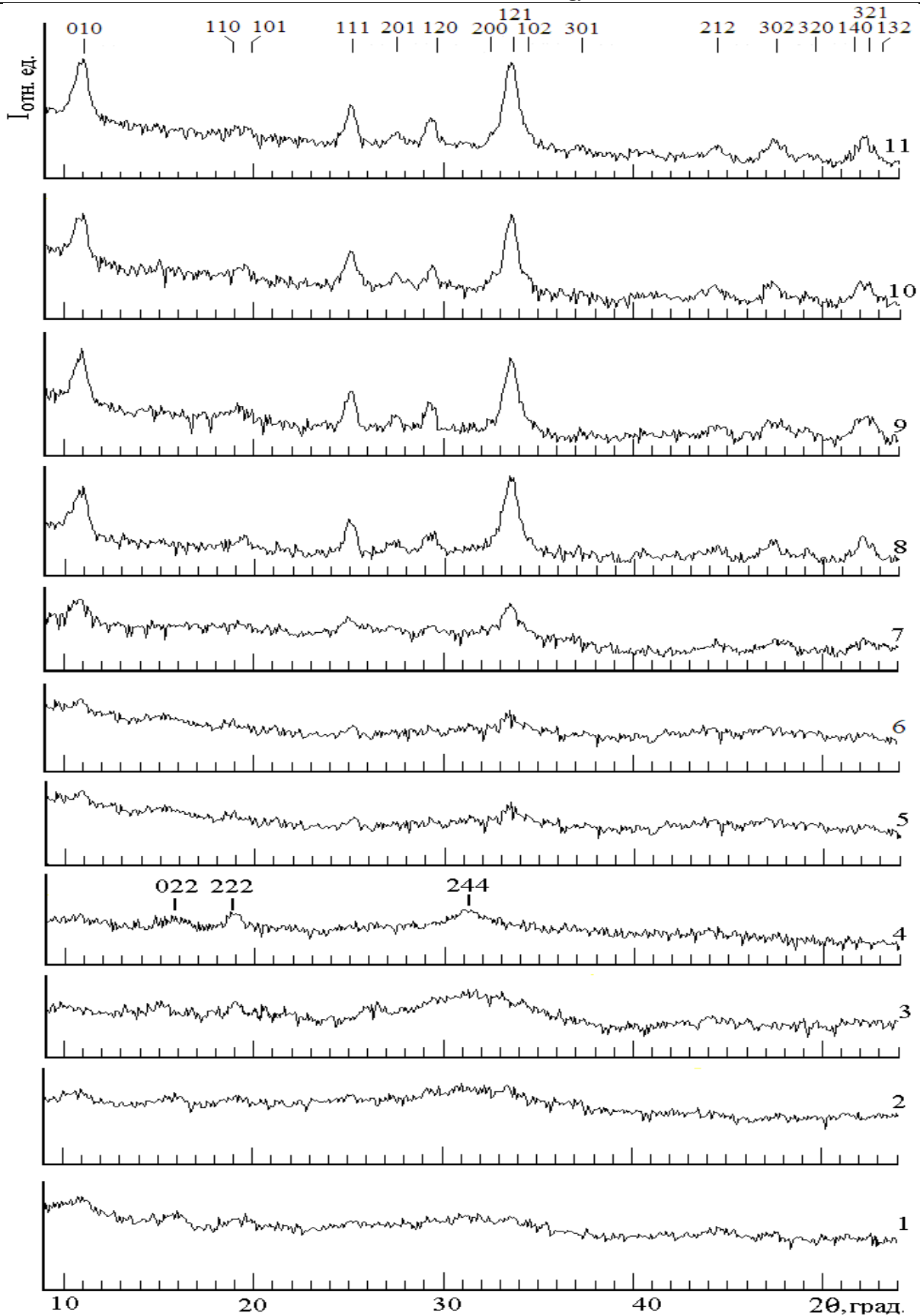


Рис. 5. Нейтронограммы аморфного  $\text{La}[\text{O}_3]$ , снятые в ходе самопроизвольной кристаллизации и превращения его в  $\text{La}(\text{OH})_3$ : 1- аморфного  $\text{La}[\text{O}_3]$ ; после выдержки его в атмосферных условиях в течение 5 (2), 10 (3), 15 (4), 20 (5), 25 (6), 30 (7), 35 (8), 40 (9), 45 (10), 50 (11) суток, соответственно.  $\text{La}(\text{OH})_3$  (рис. 5-5).

## ВЫВОДЫ

1. Обнаружено явление термоэмиссии водорода из кристаллической решетки химических соединений тригидроксидов РЗМ  $R(OH)_3$ , аналогичное наблюдаемое в твердых растворах внедрения [9-11]. Термоэмиссией водорода назовем частичное или полное удаление водорода из кристаллической решетки водородсодержащего порошкообразного кристалла без изменения симметрии кристалла в непрерывно откачиваемом высоком вакууме при температуре ниже температуры распада ( $T_{расп.}$ ) или рекристаллизации  $T_{рекр.}$  данного соединения:  $T_{эв} < T_{рекр.} < T_{расп.}$

2. Термоэмиссия водорода в порошковых кристаллах может быть новым подходом и способом получения новых порошковых кристаллических фаз неорганических соединений и новых веществ, не наблюдаемых на фазовых диаграммах и не получаемых традиционными методами (путем закалки, отжига, облучения, химической реакции и т.д.). В данном случае водород используется в качестве одного из факторов внешнего воздействия на систему, как температура, давления и др. Но при этом то или другое соединение сначала необходимо гидрировать, а затем дегидрировать в непрерывно откачиваемом высоком вакууме при температурах ниже температуры рекристаллизации или распада. В большинстве случаев в присутствии водорода в решетке многих кристаллов образуется кристаллическая структура, не свойственная соединениям, не содержащим водорода. Отсюда следует, что термоэмиссией водорода искусственно можно получить такую структуру порошковых соединений, которая не свойственна таким соединениям с ранее не выявленными новыми свойствами.

3. В настоящей работе получены метастабильные порошковые «триоксиды» РЗМ  $R^{3+}[O_3]^{6-}$  термоэмиссией водорода при температурах 400 - 420 К, которые стабильны при низких температурах  $T \leq 400$ - 420 К только в вакууме и среде, не содержащей водорода. Он обладает свойством «самозалечивания» захватывая водород в среде, содержащей водород, а в атмосферных условиях, по всей видимости, захватывая водород и отпуская  $O_2$  из молекул воды. Следовательно, вещество  $R[O_3]$  в атмосферных условиях или в любой среде, содержащей молекулы воды одновременно может быть аккумулятором водорода и генератором кислорода без предварительных условий (без нагрева и создания высокого давления). Израсходование (путем низкотемпературного удаления) водорода из  $R(OH)_3$  опять приводит к восстановлению его свойства быть одно-временно генератором кислорода и аккумулятором водорода в среде, содержащей молекулы воды. Описанный цикл можно осуществить многократно. Предложен схематический вид данного цикла.

4. Для порошковых кристаллических тригидроксидов редкоземельных металлов найдены три характерные температуры извлечения водорода из решетки в непрерывно откачиваемом высоком вакууме:

а) температура практически полной эвакуации водорода из решетки без изменения симметрии кристалла –  $T_{эв.}$  (400- 420 К), при которой кристаллическая структура вещества сохраняется, но она существенно искажена;

б) температура аморфизации –  $T_{аморф}$  (450 К), при которой полностью исчезают селективные отражения на нейтронограмме и появляются диффузные отражения;

в) температура рекристаллизация –  $T_{рекр.}$  ( $\geq 480$  К), при которой происходит образование кубической оксидной фазы  $RO_{2-x}$ .

3. Методом термоэмиссии получен сильно нестехиометрический по водороду гидроксид РЗМ  $-R[O_3H_1]$  из  $R(OH)_3$ , и тем самым показано, что концентрацию водорода в тригидроксидах РЗМ можно варьировать в широком диапазоне вплоть до полного извлечения водорода из решетки, который в водородсодержащей среде обладает свойством самозалечивания.

4. Обнаружено интересное явление, заключающееся в самопроизвольной кристаллизации аморфного вещества  $R[O_3]$  и обратном превращении его в тригидроксид  $R(OH)_3$  в нормальных атмосферных условиях с избирательным поглощением водорода из молекулы воды или из газовой среды, имеющий парциальное давление водорода. Продолжительность обнаруженного процесса составляет около 35 суток в атмосферных условиях при температурах 285-290 К.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Хидиров И.//Патент РУз № 2563 от 21.02.95/Известия ГКНТ и Пат. Вед. РУз. 1995. № 2. С. 44.
2. Хидиров И.//Альтернативная энергетика и экология. 2011. № 5. С. 68.
3. Портной К. И., Тимофеева Н. И. Кислородные соединения редкоземельных элементов. М: Металлургия. 1986. 480 с.
4. Khidirov I., Om V. T. //Phys. Stat. Sol. 1993. № 2. P. K59.
5. McCusker L. B., Von Dreele R. B. Cox D. E. et al.//J. Appl. Crust. 1999. V. 32. P. 36.
6. Нозик Ю., Озеров К. П., Хенниг К. Нейтроны и твердое тело. Структурная нейтронография. Т. 1. М.: Атомиздат. 1979. 344 с.
7. Клевцов П. В., Шеина Л. П.//Нерг. матер. 1965. Т. 1, № 12. С. 2219.
8. Арсеньев А., Ковба Л. М., Багдасаров Х. С. и др. Соединения редкоземельных элементов. Системы с оксидами элементов I-III групп. М: Наука. 1983. 300 с.
9. Khidirov I., Kurbonov I. I., Makhmudov A. Sh. //Moscow Inter. Composites Conf. Reports. London and New York: Elsevier, 1991. P. 541.
10. Khidirov I., Mirzaev B. B., Mukhtarova N. N. et al. //Carbon Nanomaterials in Clean Energy Hydrogen Systems. Series C: Environmental Security. Dordrecht, Netherlands: Springer. 2008. P. 679.
11. Khidirov I., Veziroglu T.N., Mukhtarova N.N., Veziroglu A.// International Scientific J. for Alternative Energy and Ecology. 2009. № 2. P. 8.



## О ЕДИНОЙ ПРИРОДЕ ТРЕЩИН РАДИАЦИОННОГО И НЕРАДИЦИОННОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ НА ПРИМЕРЕ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО КРЕМНИЯ, ПОДВЕРГНУТОГО АНОДНОМУ ТРАВЛЕНИЮ

Тыныштыкбаев К.Б., Рябикин Ю.А., Токмолдин С.Ж., Рақыметов Б.А.  
Физико-технический институт МОН РК, г.Алматы, Казахстан

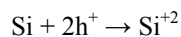
Известно, что процесс образования и роста трещин в упругой среде при радиационных, механических, тепловых и др. на неё воздействиях начинается с образования пор. В свою очередь, поры зарождаются в результате образования точечных дефектов (ТД) типа междоузельных (МУ) атомов и вакансий (V). В связи с этим представляет интерес рассмотреть возможность образования трещин на примере монокристаллического кремния, как наиболее подходящего материала для изучения динамики зарождения и формирования трещин через порообразование в процессе его электрохимического травления. При этом в условиях «мягкого» воздействия, каковым является электрохимическое травление, в нем образуются ТД и V. Это ведёт к образованию сначала одиночных, равномерно распределенных по поверхности образца нанопор, которые затем по мере их накопления при длительном травлении трансформируются в микро- и макропоры, что приводит в дальнейшем к образованию трещин, расположенных вдоль определенных кристаллографических ориентаций.

Под «мягким» воздействием подразумевается околопороговое по энергии воздействие, которое вызывает образование квазиравновесных ТД путем разрыва химических связей атомов и смещение их в МУ, и при этом считается возможным их дальнейшая миграция к различным стокам. Таким «мягким» воздействием может быть низкоэнергетические лазерное, электронное и ионное облучение, тепловое и механические воздействия, и др.

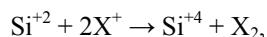
При этом не рассматривается высокоэнергетическое, высокодозное облучение, в результате которого образуются сложные дефекты типа областей разупорядочения (ОР), кластеров, когда наблюдаются блистеринг эффекты, образование газовых пузырьков, шелушение, разбухание, охрупчивание и т.д. Эта область энергии нами не рассматривается, там другие особенности процессов образования уже, по-видимому, не трещин, а разрушений, которых мы не касаемся.

В данной работе анализируются начальные этапы образования и роста трещин, которые проявляются в условиях «мягкого» воздействия. Рассмотрение начнем с электрохимической реакции травления кремния в растворе плавиковой кислоты, когда идут окислительные и восстановительные процессы с образованием различных продуктов, в том числе, точечных дефектов в виде междоузельных атомов кремния и вакансий.

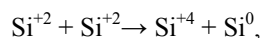
Электролитическое травление Si - это многостадийные процессы из большого количества последовательных и параллельных реакций. Основными являются две последовательно протекающие реакции. Первая из них связана с потреблением дырок  $h^+$  и приводит к образованию  $Si^{+2}$



Образующиеся при этом ионы  $Si^{+2}$  малоустойчивы, они в дальнейшем окисляются



где X – H, O, F, ... , например, ионами водорода, кислорода, фтора, либо участвуют в так называемой реакции диспропорционирования



в которой в результате обмена зарядами образуются вторичные атомы  $Si^0$  и также  $Si^{+4}$  и которые образуют устойчивые соединения с F, O, H. Эти две реакции являются определяющими при образовании пор [1] (рис.1). При длительном анодном травлении происходит насыщение раствора электролита атомами  $Si^0$ , что приводит к их осаждению на поверхность пористого кремния. При этом происходит образование вторичного пористого слоя из адсорбированных атомов Si (адатомов Si) которые образовались в результате реакции диспропорционирования (рис.2).

На рисунке 2 видны два участка пористого кремния в виде нанокристаллитов НК por-Si и в виде сплошного покрытия, образованного в результате осаждения из раствора атомов  $Si^0$ . Вторичный пористый слой состоит из аморфной [2] и рекристаллизованной [1] фаз. При этом поверхность агрегатов адатомов Si, как правило, покрыта сложными соединениями продуктов реакции анодирования и адсорбции из окружающей среды, в том числе и окислами кремния [3]. Таким образом, пористый слой в целом является сложным образованием, состоящим из однородного пористого слоя и осажденного на него адатомов Si, и представляет собой напряженную систему из-за рассогласования параметров решеток окисленных НК por-Si и c-Si матрицы. При достижении определенной толщины напряженного слоя por-Si на нем начинает происходить образование квазипараллельных трещин с определенной кристаллографической ориентацией (рис.3) [4].

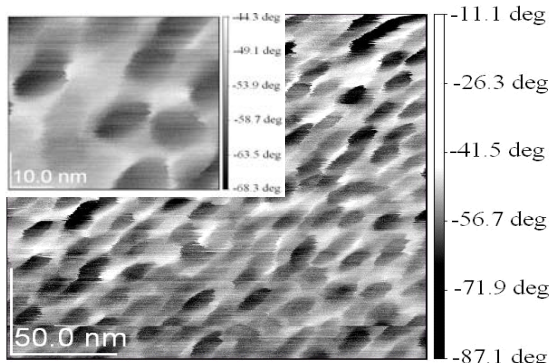


Рис.1 . Изображение в АСМ пористой поверхности кремния размером 200x200 nm и 50x50 nm.1 .Травление в электролите HF(49%) : H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%) , t<sub>травл.</sub> =30 мин.

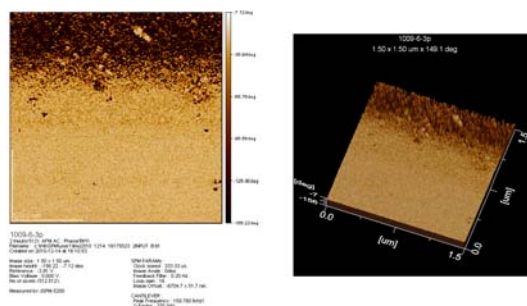


Рис.2.Электронно-микроскопическое изображение (AFM JSPM5200)поверхности пористого кремния при времени травления 60 мин в электролите HF (49%) : H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%).

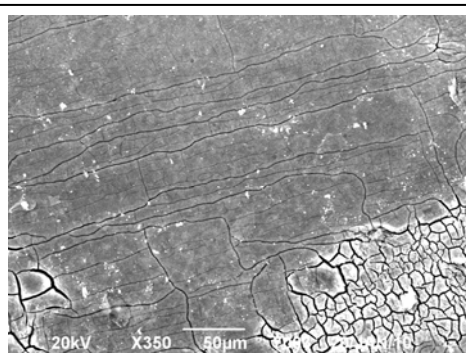


Рис.3. Электронно-микроскопическое изображение длинных квазипараллельных трещин на пористой поверхности p-Si (100) вдоль кристаллографических осей <010> и <001>, t<sub>травл.</sub> =120 мин.

поверхности образца p-Si, на котором видны различные участки поверхности с различной степенью её травления из-за неоднородности травления [12].

Неоднородность травления поверхности образца позволяет проследить на этом рисунке практически все основные этапы зарождения трещин вплоть до возникновения кремниевых выступов, разделяющих островки, что приводит к образованию мозаичной структуры p-Si.

В центральной части образца скорость травления больше, чем на периферии. На периферийной части образца, на которой из-за меньшей скорости травления протекает первоначальный этап образования

Образование трещин происходит в результате морфологической неустойчивости напряженного слоя из НК p-Si в процессе его релаксации под действием упруго-деформационных сил из-за рассогласования параметров решеток пленки p-Si и Si-подложки, и действия сил поверхностной упругой деформации [5-7]. С дальнейшим ростом толщины пористого слоя происходит развитие этих сил и дефектно-деформационных сил [8], возникающих в процессе пространственно-временного упорядочения I<sub>Si</sub> и V<sub>Si</sub>. Это приводит к образованию квазипараллельных трещин вдоль кристаллографического направлений [001]. В результате пересечения этих трещин образуется сетчатая текстура поверхности ПК (рис.4).

Следует отметить, что образование трещин на поверхности ПК наблюдалось также в работах [9-11]. Но там образование трещин происходило в процессе сушки образцов. Так в работе [11] изучена кинетика образования трещин в зависимости от времени сушки. В нашем случае кинетика образования трещин изучалась от времени травления в электролите с внутренним источником тока. На рис.5 приведено электронно-микроскопическое изображение части

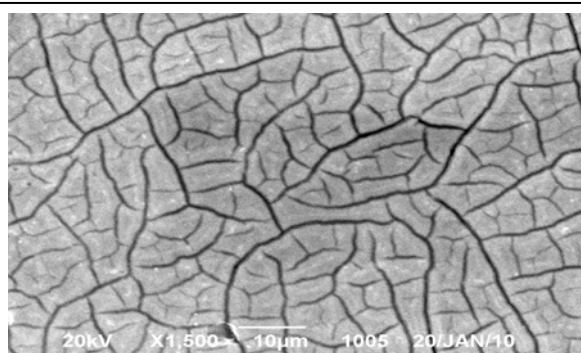


Рис. 4. Электронно-микроскопическое изображение сетчатой текстуры трещин на поверхности образца пористого кремния, протравленного в течение t<sub>травл.</sub> = 60 мин.

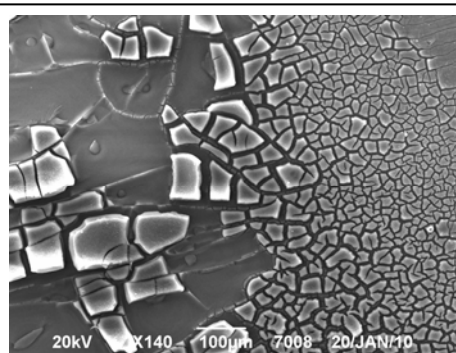


Рис.5. Изображение (JSM-6490LA) поверхности образца кремния при времени травления t<sub>etch.</sub>=120 min

квазипараллельных трещин, расположенных примерно на расстоянии 20 μm друг от друга вдоль кристаллографического направления [010].

Ближе к центру образца, т.е. при росте эффективности травления, эти трещины [010] пересекаются с зарождающимися поперечными трещинами, лежащими вдоль [001] и расположенными на таком же расстоянии одна от другой. Зарождение поперечных трещин [001] после образования трещин [010] обусловлено сложной кубической

решеткой кремния и увеличением сил поверхностной упругой деформации [7] из-за роста толщины пористого слоя. Пересечение этих трещин, образующихся вдоль направлений [010] и [001], приводит к образованию сетчатой текстуры поверхности ПК.

В центральной части образца наблюдается частично сформировавшаяся мозаичная структура  $\text{por-Si}$  в виде плоских участков неправильной формы, разделенных выступами. В отдельных местах видны углубления (ячейки), свободные от удаленных островков  $\text{por-Si}$ , что позволяет наблюдать достаточно хорошо сформировавшиеся выступы, обрамляющие ячейки и островки. На выступах заметно проявляется появление трещин (рис.5). Более детальная картина образования трещин на кремниевых выступах представлена на рис.6

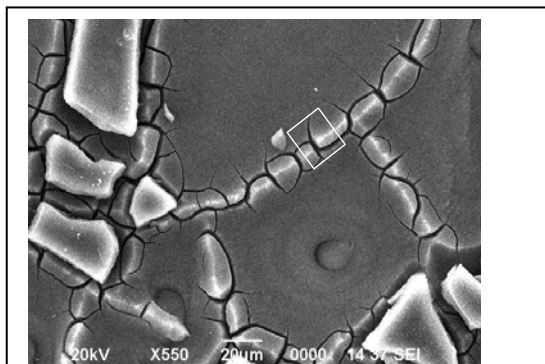


Рис.6. Электронно-микроскопическое изображение трещин на кремниевых выступах, полученных с помощью РЭМ

При длительном травлении на поверхности пористого кремния образуется высокоупорядоченная сформировавшаяся мозаичная структура (рис.7). На этом рисунке также отчетливо видно образование трещин на выступах, обрамляющих ячейки и островки, и появление их на отдельных островках. Зарождение трещин на островках показано на рис.8.

Отметим, что при дальнейшем травлении наблюдается залечивание трещин.

В целом, образуется высокоупорядоченная мозаичная структура с высокой степенью упорядочения островков по форме, размерам и периодам расположения, средний диаметр островков составляет 18 мкм, период расположения около 20 мкм .

Анализ динамики формирования трещин на островках (рис.7,8) показывает, что в основе появления трещин на поверхности  $\text{por-Si}$  лежит процесс зарождения и формирования кремниевых выступов. Кремниевые выступы формируются на поверхности  $\text{c-Si}$  под слоем  $\text{por-Si}$  из материала  $\text{Si}$ -подложки при ее травлении

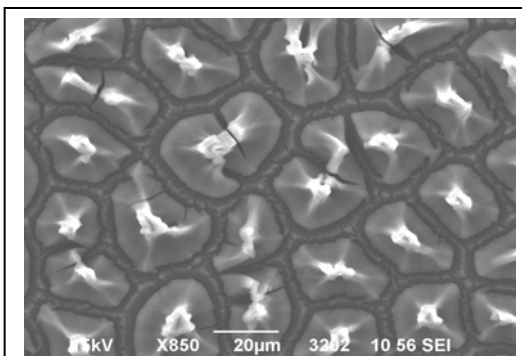


Рис. 7. Электронно-микроскопическое изображение мозаичной структуры поверхности образца ПК, полученного при длительном (240 мин) травлении образца  $\text{p-Si}$  (100) в  $\text{HF}$  (49%): $\text{H}_2\text{O}_2$  (40%): $\text{H}_2\text{C}_2\text{O}_4$

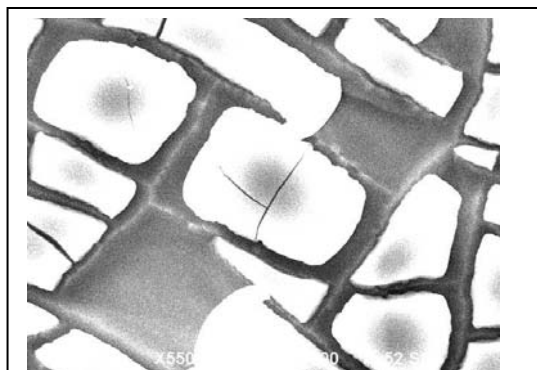


Рис.8 Электронно-микроскопическое изображение трещин на островках мозаичной структуры поверхности ПК полученные с помощью РЭМ

Для объяснения динамики зарождения трещин и формирования кремниевых выступов нами была привлечена модель дефектно-деформационного механизма (ДДМ) упорядочения точечных дефектов (ТД) - междоузлий  $\text{I}_{\text{Si}}$  и вакансий  $\text{V}_{\text{Si}}$ , возникающих при реакциях травления кремния, предложенная первоначально для образцов различных материалов - полупроводников, металлов, диэлектриков, подвергнутых воздействиям лазерного излучения малой интенсивности [8]. В последствии она была развита и для образцов, подвергнутых электрохимическому травлению [13].

Продукты химических и электрохимических реакций травления кремния ( $\text{I}_{\text{Si}}$  и  $\text{V}_{\text{Si}}$ ) одновременно являются структурными дефектами поверхностной и приповерхностной областей  $\text{c-Si}$ .  $\text{I}_{\text{Si}}$  из-за высокой их подвижности диффундируют быстрее  $\text{V}_{\text{Si}}$  на большие расстояния и к различным стокам. В случае  $\text{por-Si}$  стоками для  $\text{I}_{\text{Si}}$  является граница раздела (ГР) упруго-напряженного слоя НК  $\text{por-Si/c-Si}$  из-за несоответствия параметров решеток НК  $\text{por-Si}$  и  $\text{c-Si}$ , так как НК  $\text{por-Si}$  представляют собой неоднородную систему из  $\text{c-Si}$ , покрытого слоями его гидридов и оксидов. Преимущественными направлениями перемещения  $\text{I}_{\text{Si}}$  являются кристаллографические оси с наименьшей плотностью упаковки атомов решетки кристалла, что было впервые показано в работе [7]. Для  $\text{c-Si}$  с плоскостью поверхности (100) это характерные направления [010] и [001].  $\text{V}_{\text{Si}}$  также перемещаются к различным стокам путем замещения их атомами кремния, но скорость их диффузии мала по сравнению со скоростью для  $\text{I}_{\text{Si}}$ . Поэтому  $\text{V}_{\text{Si}}$ , как правило, сосредотачиваются на поверхности  $\text{c-Si}$ , являясь затравочными центрами для возникновения пор [13]. Таким образом, происходит пространственно-временное распределение  $\text{I}_{\text{Si}}$  и  $\text{V}_{\text{Si}}$ , и их локализация в поверхностной и приповерхностной областях  $\text{c-Si}$ , что приводит к образованию волнового рельефа поверхности в виде выступов и впадин, и к дополнительной деформации поверхности кристалла [8, 13].

При достижении критического порогового значения концентраций  $I_{Si}$  и  $V_{Si}$  имеет место спонтанное их самоупорядочение.  $V_{Si}$  самоупорядочиваются равномерно по поверхности в виде квазигексагональных формирований [13], а  $I_{Si}$  преимущественно вдоль кристаллографических направлений [010] и [001] на границе раздела (ГР) НК  $por-Si/c-Si$ .

Скопление  $I_{Si}$  приводит к зарождению кремниевых выступов под пористым слоем на ГР упруго-напряженного слоя НК  $por-Si/c-Si$ . По мере роста выступов усиливается напряжение, создаваемое ими на пористый слой кремния. При достижении критического напряжения упругой деформации, соответствующего критической толщине поверхностно-дефектного слоя (пористого слоя  $d_{пор}$ ), происходит релаксация этого упруго-напряженного слоя [7] путем образования трещин на поверхности  $por-Si$  вдоль направлений [010] и [001] (рис.5).

Этот процесс повторяется уже и на кремниевых выступах мозаичной структуры  $por-Si$ , где также наблюдаются трещины, имеющие характерную направленность, обусловленную кристаллографической ориентацией материала подложки (рис.3). Таким образом, образование трещин на кремниевых выступах обусловлено накоплением  $I_{Si}$  согласно ДДМ [10] в межрешеточном пространстве поверхностного слоя  $c-Si$ .

Принципиально важным является решение вопроса о расстоянии между трещинами, что в конечном итоге определяет размеры островков НК ПК и период мозаичной структуры  $por-Si$  (рис.7). Расстояние между трещинами и период мозаичной структуры обусловлены наряду с действием упруго-деформационных сил [5-7], ДДМ [13], действием капиллярно-флуктуационных сил, возникающих в тонких субмикронных слоях заряженной жидкости (электролита) на поверхности  $Si$ -электрода [14, 15]. Установлено, что под действием капиллярно-флуктуационных сил на ГР кремний/электролит во время анодного травления наблюдается распад фронта электрохимической реакции на множество изолированных микроскопических областей. Нестабильность плоского профиля ГР кремний/электролит во время анодного травления  $p-Si$  обусловлена малыми возмущениями на ГР электролит/полупроводник, вызванными флуктуациями электрического поля области пространственного заряда полупроводника при транспорте дырок в кремнии (и ионов в электролите), а также энергии поверхностного капиллярного натяжения. Это аналогично морфологической неустойчивости, возникающей при зародышеобразовании в процессе роста кристалла [16]. Период волновых колебаний поверхностных капиллярно-флуктуационных сил в зависимости от толщины дефектного слоя может достигать значительных величин (микрометры и более) [15]. Периоды расположения трещин и, как следствие, период расположения островков мозаичной структуры определяются действием капиллярно-флуктуационных сил, и составляют приблизительно 20  $\mu m$ , что соответствует величине толщины пористого слоя  $d_{пор}$ . Под действием этих сил происходит модуляция величины электрического поля внутреннего источника тока, перпендикулярного к ГР сред. При этом в зависимости от локальных значений диэлектрической проницаемости граничащих сред и коэффициента поверхностного капиллярного натяжения жидкости происходит искажение формы электрической волны. При этом происходит перераспределение самосогласованного электрического поля внутреннего источника тока. Это приводит к неравномерной интенсивности травления различных областей поверхности  $por-Si$ . В местах, соответствующих впадинам волны, из-за меньшей интенсивности травления, будут образовываться островки МС  $por-Si$ , а в местах, соответствующих вершинам волны, из-за более интенсивного травления, будут образовываться углубления и выступы, разделяющие островки МС  $por-Si$ .

Следовательно, можно считать, что совместные действия сил упругой деформации из-за несоответствия решеток [1, 2], ДДМ [8, 13] и капиллярно-флуктуационных [14, 15], возникающих на ГР Эл-т/НК  $por-Si/c-Si$ , и определяют период расположения трещин и соответственно период мозаичной структуры поверхности  $por-Si$ .

Таким образом, вышеприведенные факты указывают на то, что образование трещин в твердых телах при различных воздействиях (химическое и электрохимическое травление, радиационные, тепловые, механические и другие процессы) имеет одинаковую природу. На основании полученных данных можно сделать вывод, что она определяется начальной стадией дефектообразования, а именно, возникновением ТД -  $I_{Si}$  и  $V_{Si}$  и процессами дальнейшего их накопления. Эти процессы зависят от условий эксперимента, в которых проявляется многообразие действующих факторов и параметров, начиная с влияния атомной шероховатости поверхности реального кристалла и упруго-деформационных сил, возникающих при этом, до дефектно-деформационного механизма упорядочения дефектов. Основные закономерности образования трещин и дефектно-деформационного механизма самоупорядочения дефектов в виде мозаичной структуры расположения островков НК  $por-Si$  в нашем случае, обусловлены квантово-размерными эффектами, имеющими место на локальных микроскопических участках атомно-шероховатой поверхности реального кристалла  $Si$  при травлении.

#### Литература

- 1 Д.Н. Горячев, Л.В. Беляков, О.М. Сресели. О механизме образования пористого кремния // ФТП. 2000. Т. 34. № 9. С. 1130 - 1134.
- 2.В.В.Ратников, Л.М.Сорокин, В.И.Соколов, А.Е.Калмыков. Рентгеновская дифрактометрия и электронная микроскопия слоев пористого  $Si$  на разных стадиях окисления на воздухе// ФТТ. 2009. Т. 51. Вып. 12. С. 2289 – 2295.
- 3 К.Б.Тыныштыкбаев, Ю.А.Рябкин, С.Ж.Токмолдин, Т. Айтмуқан, Б.А. Рақыметов, Р.Б.Верменичев. Морфология пористого кремния при длительном анодном травлении в электролитах с внутренним источником тока // Письма в ЖТФ, 2010, т.36, вып.11, с.104-110.
- 4 К.Б.Тыныштыкбаев, Ю.А.Рябкин, Т.Айтмуқан, К.А.Мить, Б.А.Рақыметов. Динамика формирования мозаичной структуры пористого кремния при длительном анодном травлении в электролитах с внутренним источником тока// ФТТ. 2011.Т.53.№ 8. С.1498- 1504.
- 5 А.Ф. Андреев, А.Я. Паршин.О равновесной форме и колебаниях поверхности квантовых кристаллов // ЖЭТФ. 1978. Т. 75, Вып.3 (10). С.1511 - 1516.

- 6 В.И. Марченко, А.Я. Паршин. Об упругих свойствах поверхности кристаллов // ЖЭТФ. 1980. Т.79. Вып.1(7). С. 257 – 260
- 7.Н.Н.Леденцов, В.М.Устинов, В.А.Щукин, П.С.Копьев, Ж.И.Алферов, Д.Бимберг Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры // ФТП. 1998. Т. 32. № 4. С. 385 – 410.
- 8 В.И.Емельянов. Самоорганизация упорядоченных дефектно-деформационных микро- наноструктур на поверхности твердых тел под действием лазерного излучения// Квантовая электроника. 1999. Т. 28. № 1. С. 2 - 18.
- 9 G. Amato, V.Bularra, N. Brunetto, L. Boarino. Drying of porous silicon: a Raman, electron microscopy and photoluminescence study // Thin Solid Films. 1996.V. 276. No 1-2. PP. 204 - 207.
- 10 O. Belmont, C. Faivre, D. Bellet, Y. Brechet. About the origin and the mechanisms involved in the cracking of highly porous silicon layers under capillary stresses // Thin Solid Films. 1996.V. 276. No 1-2. P. 219-222.
- 11 Д.С. Гаев, С.Ш. Рехвиашвили Кинетика образования трещин в пористом кремнии.//ФТП. 2012. Т.48. № 2.С. 145-149.
- 12 R.L.Smith, S.D.Collins Porous silicon formation mechanisms // J.Appl. Phys. 1992. V. 71. No 8. P. R1 – R22.
- 13 Емельянов В.И., Еремин К.И., Старков В.В. Дефектно-деформационный механизм спонтанной нуклеации ансамбля пор в твердых телах и его экспериментальная проверка // Квантовая электроника. 2002. Т. 32. № 6. С. 473 - 475.
- 14 A.Valance. Porous silicon formation: Stability analysis of the silicon-electrolyte interface // Phys. Rev. 1995. V. B 52. No p. 8323 - 8336.
- 15 А.В.Климов, А.И.Григорьев. О нелинейном капиллярно-флуктуационном периодическом волновом движении в тонкой пленке жидкости на твердой подложке// ЖТФ. 2009. Т. 79. Вып. 10. С. 14 – 21.
16. С.А.Кукушкин, А.В. Осипов. Процессы конденсации тонких пленок // УФН. 1998. Т. 168. № 10. С.1083-1116.

### **О РОЛИ ПРИМЕСИ ХРОМА НА ОБРАЗОВАНИИ РАДИАЦИОННЫХ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В КРИСТАЛЛАХ СО СТРУКТУРОЙ ГРАНАТА.**

Курбанов А.М., Нуритдинов И., Гаппаров А.  
ИЯФ АН РУз, г. Ташкент, Узбекистан

Под действием ИИ в большинстве широкозонных активированных и нелегированных монокристаллах образуются радиационные центры окраски. Центры окраски, обусловленные введением активатора, нередко определяются изменением зарядового состояния примеси [1]. Изменение зарядового состояния активатора свидетельствует с существенной перестройке электронной системы кристалла и приводит к изменению ряда его физических свойств.

В связи с этими работами [2-5] были исследованы центры окраски кристаллов ИАГ участием примеси ионов хрома. Авторы, [2,3] связывали образование радиационных центров окраски в ИАГ- $\text{Cr}^{3+}$  с восстановлением примеси  $\text{Cr}^{3+} \rightarrow \text{Cr}^{2+}$ . Другие авторы [4,5] предполагали что более вероятным является переход  $\text{Cr}^{3+} \rightarrow \text{Cr}^{4+}$ . Авторы [4] полагают, что с изменением комбинациями Cr ситуация изменяется. С повышением концентрации примеси хрома примеси являются центрами рекомбинации и электронов и дырок, что приводит к малому изменению спектра поглощения и сигнала ЭПР соответствующих  $\text{Cr}^{3+}$  иону.

Таким образом, несмотря на многочисленные публикации по центров окраски в кристаллах со структурой граната, до сих пор нет единого мнения, а в ряде случаев имеются и противоречивые данные о роли примеси хрома в формировании центров окраски. В связи с этим была исследована радиационная и термическая окрашиваемость кристаллов ГСАГ и ИСАГ в зависимости от концентрации примеси хрома.

Исследуемые монокристаллы  $\text{Gd}_3\text{Sc}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$  были выращены методом Чохральского. Концентрации хрома была  $10^{19}$  и  $2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ . Образцы размерами  $10 \times 10 \times 1 \text{ мм}$  были вырезаны из буле и отполированы до получения оптической поверхности. Спектры оптического поглощения исследуемых кристаллов снимались при 300 и 77 К в области 200-900 нм на стандартном двулучевом спектрофотометре Specord M-40. Облучение осуществлялось гамма-источником  $\text{Co}^{60}$  мощностью 350 р/с до дозы  $10^6 \text{ Р}$ . Интегральное термовысвечивание (ТВ) и спектральный состав термолюминисценции (ТЛ) в области 200-800 нм регистрировались в диапазоне температур 100-600 К при скорости нагрева 0,23 К/с. Спектральный состав люминесценции ТЛ в спектральной области 300-1000 нм регистрировалось на специально разработанной установке, собранной на базе монохроматора SPM-2 и фотоумножителя ФЭУ -106 при температурах 77-300 К.

Известно [6], что ионы  $\text{Cr}^{3+}$  преимущественно замещает атомы скандия в а-узлах решетки граната. В оптических спектрах поглощения ГСАГ- $\text{Cr}^{3+}$  наблюдаются две полосы поглощения с максимумами в 460 и 640 нм, соответствующие переходам  $\text{Cr}^{3+}$ . Под действием гамма облучения наблюдается наведенное поглощение с максимумами при 260,290,350,420 и 500 нм (рис.1), аналогичное, наблюдаемому в облученных номинально чистых кристаллах (рис.2). Однако, в активированных кристаллах оптическая плотность на полосах поглощения при 260 и 500 нм значительно выше и возрастает пропорционально концентрации хрома в интервале  $10^{19} - 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , что указывает на их принадлежность активаторным центрам.

Для выяснения знака полосы поглощения была проведена окислительная термообработки при температуре  $1100^\circ\text{C}$ . После окислительной термообработки в спектре поглощения наблюдается два полосы поглощения с максимумами



при 260 и 500 нм (рис.2 кривая 2). Это свидетельствует о переходе  $\text{Cr}^{3+}$  в более высокое зарядовое состояние  $\text{Cr}^{4+}$ . Одновременно наблюдается и уменьшение гамма облученных полос поглощения. (Рис. 2 кривая 4) Такая же уменьшение после гамма облучения наведенного поглощения наблюдается и с увеличением концентрации хрома, а в кристаллах с  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$  почти не наблюдается (рис. 1). Полученные экспериментальные данные показали, что в кристаллах ГСАГ с концентрацией хрома  $10^{18}$  и  $3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$  интенсивность наведенного поглощения минимальна. Значения концентрации хрома, максимально чувствительных к окрашиванию, лежат в пределах  $10^{19} \div 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  (рис.3).

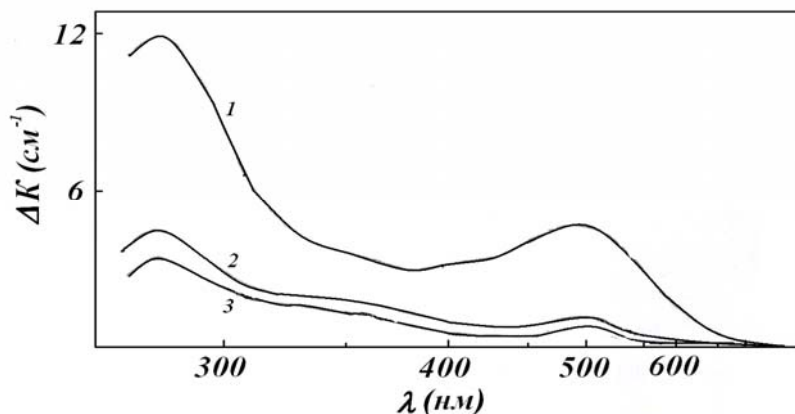


Рис. 1– Спектры наведенного поглощения в кристаллах ГСАГ-  $\text{Cr}^{3+}$  после  $\gamma$ -облучения при концентрациях хрома: 1-  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ; 2-  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ; 3-  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

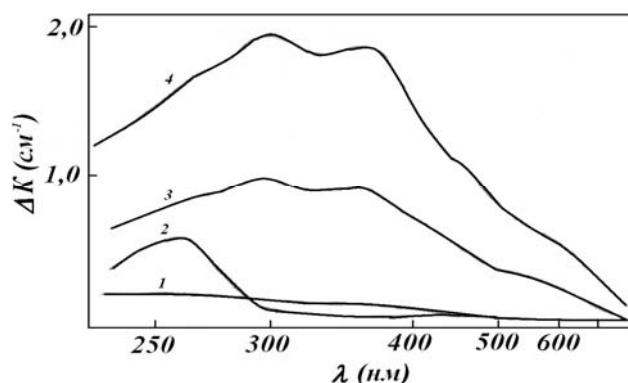


Рис. 2– Спектры наведенного поглощения в неактивированном кристалле ГСАГ при  $\gamma$ -облучении и термообработке: 1- исходном образце; 2 - термообработанном на воздухе при  $1100^\circ\text{C}$ ; 3 - в кристалле, 1 после  $\gamma$ -облучения; 4 – в кристалле 2, после  $\gamma$ -облучения

Полученные результаты могут навести на мысль, что ионы  $\text{Cr}$  не изменяют свое зарядовое состояние с повышением концентрации. Однако, дальнейшее исследование показало, что независимо от концентрации хрома после воздействия ионизирующего излучения, ионы хрома свое валентное состояние изменяют. Об этом свидетельствуют результаты, приведенные на рис 4. Спектр хрома при концентрации  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  не отличается от такового при 300 К. С повышением концентрации хрома максимумом наведенной полосы поглощения смещается от 500 нм в длинноволновую сторону до 530 нм (рис. 4, кривые 1 и 2). С отжигом до температуры 140 К, соответствующей пику ТВ наведенное поглощение при 530 нм исчезает и проявляется полоса наведенного поглощения при 500 нм, которая также отжигается при нагреве до комнатной температуры. Эта указывает на образование кроме центров  $\text{Cr}^{4+}$  еще, как минимум, одного центра окраски, стабильного до 130 К. Это могут быть парные центры  $\text{Cr}^{4+} - \text{Cr}^{4+}$ , вероятность образования которых при большой концентрации хрома значительно повышается. Зависимости окрашиваемости кристалла от концентрации хрома при 77 и 300 К отличаются. Если наведенное поглощение на  $\lambda=500 \text{ нм}$  при 300 К уменьшается начиная с  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ , то при 77 К уменьшение интенсивности начинается с  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 10^{20} \text{ см}^{-3}$ . При 77К наблюдается увеличение интенсивности полосы поглощения с максимумом при 530 нм (рис.3. кривая 3) с увеличением концентрации хрома.

Кроме этого, количество содержания хрома сильно влияет на образование центров окраски, связанных со структурными дефектами. С повышением концентрации хрома, снижается наведенное поглощение на полосе при 420 нм, обусловленное  $\text{O}^-$ -центрами (дырка около катионной вакансии) [7]. При концентрации хрома  $C_{\text{Cr}^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$  это полоса поглощения исчезает и одновременно исчезает и высоко температурный пик ТВ при 380 К. Возможно, это

связано с большой, по сравнению с собственными дефектами, конкурента способностью ионов хрома в захвате дырок. В исследуемых кристаллах, ИСАГ, как и в случае ГСАГ, с повышением концентрации хрома падает интенсивности наведенного поглощения. Если при концентрации хрома  $C_{Cr^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  интенсивность наведенного поглощения максимальна, то с увеличением концентрации до  $C_{Cr^{3+}} \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$  интенсивности падает в 3 раза. И одновременно уменьшается интенсивность высокотемпературного пика ТВ при 380К (рис.5). Из анализа кривых ТВ неактивированных кристаллах ГСАГ видно (рис.6), что в исследуемой температурной области при 130, 170, и 380 К наблюдается пики термовысвечивания. С вхождением ионов хрома сильно изменяются кривые ТВ. При концентрации хрома  $C_{Cr^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$  наблюдается пики ТВ с максимумами 290 и 360К. С увеличением концентрации хрома до  $C_{Cr^{3+}} \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$  высокотемпературный пик исчезает, пик с максимумом 290 К смещается до 240 К и одновременно образуется новый пик с максимумом 130 К. Дальнейшее увеличение концентрации хрома приводит к падению интенсивности пика с максимумами 240 К и увеличению интенсивности пика 130К (рис.11.кривые 4). Исходя из анализа экспериментальных результатов полагаем, что пик ТВ с максимумом 240К обусловлен с  $Cr^{4+}$ . Такое же перераспределение интенсивностей пиков ТВ с повышением концентрации хрома наблюдается в кристаллах ИСАГ-Сг (рис. 6. кривая 2).

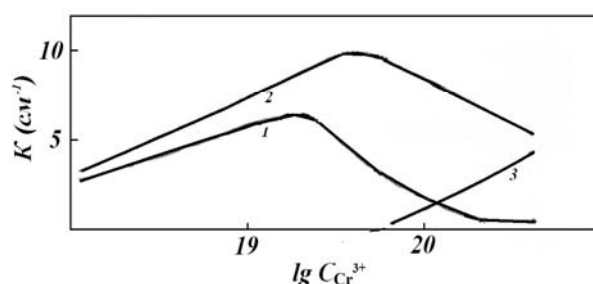


Рис. 3– Зависимость коэффициента наведенного поглощения от концентрации хрома при 300 К (1) и 77(2,3) при длинах волны  $\lambda=500 \text{ нм}$ (1,2) и  $\lambda=530 \text{ нм}$  (3).

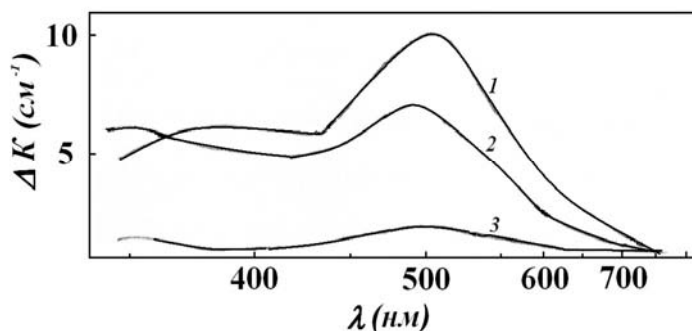
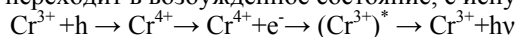


Рис. 4 – Спектры наведенного поглощения в кристаллах ГСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ) после  $\gamma$ -облучения (1); после отжига до 140 К (2) и после отжига до 300 К (3).

С повышением концентрации хрома, уменьшается пик ТВ соответствующий  $Cr^{4+}$  (240 К) и наблюдается новый пик 130 К, это указывает на образование кроме центров еще, как минимум, одного центра, стабильного до 130 К. Этом центром может быть, как мы предполагали ранее, парные центры  $Cr^{4+} - Cr^{4+}$ , вероятность образование которых при большой концентрации хрома значительно повышается. Это предположение подтверждается уменьшением предполагаемой  $Cr^{4+}$  одиночных центров, соответствующих пику ТВ 240 К. Спектральный состав ТВ исследуемых кристаллов совпадает с фотолюминесценцией  $Cr^{3+}$ , приведенной в литературе [18,19]. Можно предположить, что с повышением температуры электроны освобождаются из мелких ловушек и рекомбинируют с дырками, захваченными на  $Cr^{3+}$ . В результате рекомбинации  $Cr^{3+}$  переходит в возбужденное состояние, с испусканием кванта света:



### Выводы

1. При воздействии ионизирующего излучения на исследуемые кристаллы для ионов  $Cr^{3+}$  характерен окислительный процесс (захват дырки) с образованием центра  $Cr^{4+}$ , ответственного за полосы поглощения при 260 и 500 нм.

- При активации кристаллов ГСАГ и ИСАГ с хромом концентрацией  $C_{Cr^{3+}} \geq 10^{20} \text{ см}^{-3}$  снижение уровня радиационного окрашивания в температурной области  $T \geq 300 \text{ К}$  происходит преобразованием простых акцепторных центров  $Cr^{4+}$  в комплексные дефектные акцепторные центры  $Cr^{4+} - Cr^{4+}$ , стабильные при  $T \leq 140 \text{ К}$ .
- В кристаллах ГСАГ и ИСАГ высокотемпературной пики ТВ в области  $T \geq 400 \text{ К}$  основном, связаны со структурными дефектами типа катионной вакансии.

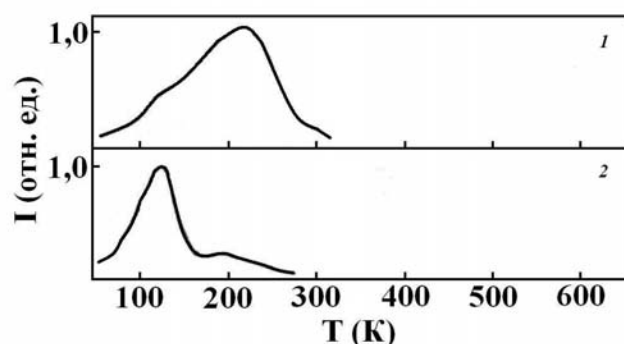


Рис. 5– Термостимулированная люминесценция  $\gamma$ -облученных при 77 К дозой  $10^6 \text{ Р}$  кристаллов ИСАГ-  $Cr^{3+}$ : 1- ИСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ); 2- ИСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ).

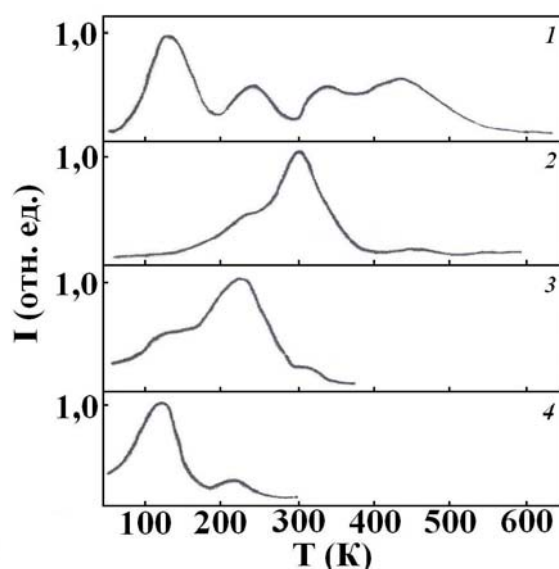


Рис. 6 – Термостимулированная люминесценция  $\gamma$ -облученных при 77 К дозой  $10^6 \text{ Р}$  кристаллов ГСАГ-  $Cr^{3+}$ : 1- неактивированного; 2- ГСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 5 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-3}$ ); 3- ГСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 2 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ); 4- ГСАГ-  $Cr^{3+}$  ( $C_{Cr^{3+}} \sim 3 \cdot 10^{20} \text{ см}^{-3}$ ).

#### Литература

- Жариков Е.В., Куратов И.И., Лаптев В.В. и др. Влияние УФ и  $\gamma$ - облучения на генерационные характеристики неодимовых лазеров. // изв. АН СССР. Сер. Физ., -1984. –Т. 48. С. 1351-1353.
- Константинов Н.Ю., Карасаева Л.Г., Громов В.В. Спектры оптического поглощения дырочных центров в  $\gamma$ - облученных монокристаллах алюмоиттриевого граната. // ДАН СССР. -1980. Т.255 №3, -С. 631-634.
- Карасаева Л.Г., Саунин Е.И., Громов В.В., Спицин В.И. Парамагнитные центры  $\gamma$  –облученных монокристаллов алюмоиттриевого граната при низких температурах. // ДАН СССР. -1975. –Т.225, №2, - С. 349-356.
- Кулагин Л.Г., Озеров М.Ф., Рохманова В.О. Влияние  $\gamma$ - облучения на электронное состояние ионов хрома в монокристаллах  $Y_3Al_5O_{12}$ . // ЖПС. -1987. –Т.47. С. 612-616.
- Крутова Л.И., Кулагин Н.А., Сандуленко А.В. Электронное состояние и позиции ионов хрома в кристаллах граната. // ФТТ. -1989. –Т.31, в.7. –С. 170-175.
- Прохоров А.М. Новое поколение твердотельных лазеров. //УФН – 1986 – т.148 - №1 – С.7-33.
- Курбанов А.М. Радиационные центры окраски и рекомбинационная люминесценция в кристаллах со структурой граната. / Дис. канд. физ. -мат. наук. Ташкент, 1993. 124 с.



## О ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ КОНСТРУКЦИОННЫХ АЛЮМИНИЕВЫХ СПЛАВОВ

И.Х. Абдукадырова, С.А. Байтелесов, Ш.А. Аликулов  
Институт ядерной физики Академии наук Узбекистана. Ташкент  
(100214 Ташкент, пос. Улугбек, ИЯФ АН РУз. E-mail: izida@inp.uz)

Изменение теплофизических свойств твердотельных материалов при облучении в каналах ядерного реактора имеет существенное значение для реакторостроения. К таким свойствам следует отнести теплопроводность и коэффициент термического расширения этих материалов. Имеется ряд сообщений для некоторых твердых тел, нашедших применение в конструкциях реакторов, который свидетельствует о довольно больших изменениях такой важнейшей теплофизической характеристики, как теплопроводность, теплоемкость и др., к тому же, среди них встречаются и противоречивые результаты.

В работе [1] приведены данные об изменении теплопроводности ( $\lambda$ ) кварца и кварцевого стекла, графита и сапфира, окиси бериллия и др. материалов, применяемых в реакторной и космической технике, показано, что она сильно изменяется после облучения из нейтронами. Авторы [2] исследовали теплоемкость и теплоту при фазовых превращениях в материалах активной зоны реакторов на примере многокомпонентных циркониевых сплавов, определили их зависимость от температуры и состава. Методом расчета эффективного коэффициента  $\lambda$  в элементарной ячейке волокнистых материалов рассмотрены [3] возможные механизмы передачи тепла в них и особенности [4] течения воздушных смесей в вертикальных каналах реактора, влияющих на эти процессы в некоторых конструкциях. В [5] анализируется вопрос влияния пор на значение  $\lambda$  биоуглеродных материалов, используемых в атомной технике. Вместе с тем, заметим недостаточное число публикаций, посвященных данной тематике влияния реакторного излучения на теплофизические свойства конструкционных сплавов на основе алюминия, что и определило актуальность задачи нашего исследования.

Цель настоящей работы: изучение процесса изменения теплопроводности перспективных конструкционных сплавов до и после реакторного облучения в зависимости от температуры, до которой нагревались образцы (в нашем случае - от 25 до 220<sup>0</sup> С), выявление особенностей ее модифицирования после действия на материал различных флюенсов быстрых нейтронов, оценка радиационного и температурного эффекта, определение природы рассматриваемого явления переноса тепла в конструкционном алюминиевом сплаве САВ-1.

Табл. 1. Данные о размерах исходных образцов САВ-1

№	вес м, г	h, мм	S, мм <sup>2</sup>	d, мм
1 образец	1,367	2,78	176.625	15
2 образец	1,798	3,53	176.625	15

Объектами исследования служили образцы конструкционного сплава САВ-1, из которого изготовлены оболочки твэлов некоторых ядерных реакторов. Облучение пластин проводили в вертикальных каналах активной зоны ядерного реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУз, флюенсов быстрых нейтронов варьировался от 10<sup>15</sup> до 10<sup>19</sup> см<sup>-2</sup>. Эксперимент проводился на дисковых образцах № 1 и № 2, отличающихся своими размерами (табл.1). Измерения теплопроводности выполнены на приборе ИТ- $\lambda$ -400, в качестве метода исследования теплофизического параметра использованных сплавов нами среди многих известных методик был выбран довольно чувствительный метод динамического калориметра. Расчет теплопроводности образцов проведен по следующей формуле, связывающей перепад температуры  $\Delta t$  в образце и тепломере, толщину h и сечение S пластин и др. :

$$\lambda = K^*_{T} \cdot \frac{n_{tal}}{n_{0al}} \cdot \frac{h_{al}}{S_{CU}} (1 - \sigma_c) \quad , \quad K^*_{T} = \frac{n_{0CU}}{n_{1CU}} \cdot \frac{S_{CU} \cdot \lambda_{CU}}{h_{CU} \cdot (1 - \sigma_c)} \quad , \quad (1)$$

где  $n_0$  и  $n_1$  – перепад температуры на образце и стержне, S - площадь поперечного сечение образца, h - высота образца,  $\sigma_c$  - поправка, учитывающая теплоемкость.

Таблица 2. Результаты вычисления теплопроводности образца №1

№	Температура t, <sup>0</sup> С	Перепад t ( $\Delta t$ ) на стержне	Перепад t ( $\Delta t$ ) на образце	Теплопровод, $\lambda$ (Вт/м.град)
1.	25 <sup>0</sup>	$n_1 - 4,5$	$n_0 - 5,5$	157,2
2.	50 <sup>0</sup>	$n_1 - 6,0$	$n_0 - 9,0$	159,0
3.	75 <sup>0</sup>	$n_1 - 7,5$	$n_0 - 10,0$	158,1
4.	100 <sup>0</sup>	$n_1 - 8,8$	$n_0 - 11,0$	136,9
5.	125 <sup>0</sup>	$n_1 - 9,0$	$n_0 - 10,9$	152,1
6.	150 <sup>0</sup>	$n_1 - 8,6$	$n_0 - 10,6$	156,1
7.	175 <sup>0</sup>	$n_1 - 9,5$	$n_0 - 10,5$	167,2
8.	200 <sup>0</sup>	$n_1 - 9,7$	$n_0 - 10,6$	177,8

Получены экспериментальные результаты температурной зависимости теплопроводности исходных материалов. Из табл.2 видно, что возможный максимум зависимости  $\lambda(T)$ , вероятно, расположен при более низких температурах, что ход кривых для пластин № 1 имеет немонотонный характер. Сначала по мере нагрева образцов от комнатной до  $T=100^{\circ}\text{C}$  теплопроводность уменьшается, что соответствует формуле Дебая [6] :

$$\lambda = (1/3) C v l, \quad (2)$$

где  $\lambda$  - теплопроводность,  $v$  – скорость,  $l$  - длина свободного пробега электрона,  $C$  - теплоемкость. Затем направление смещения кривой меняется на противоположное, в целом диапазон изменения  $\lambda$  составляет 157-137-178 Вт/(м.К), из которого следует вывод о значительной величине температурного эффекта.

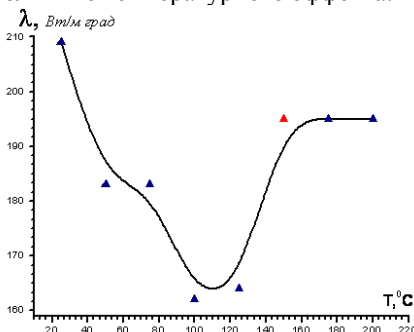


Рис. 1. Особенности кривой  $\lambda(T)$  образца №2.

Аналогичная кинетика установлена и для образца № 2 (рис. 1), но есть и ее различие, ибо диапазон изменения теплопроводности здесь иной: 209-162-195 Вт/(м.К), примечательно то, что выявленный для образца № 1 ход зависимости с наличием особой точки в виде минимума сохраняется. Из сопоставления обеих температурных кинетик следует, что образцах имеется отклонение закономерности от закона  $1/T$  в виде плато около 60-70 $^{\circ}\text{C}$ .

Табл. 3. Данные относительного изменения температурного эффекта теплопроводности исходных образцов при  $T_1$  и

Образцы	$T_2$		$\Delta \lambda / \lambda$ , отн.ед.
	$T_1, ^{\circ}\text{C}$	$T_2, ^{\circ}\text{C}$	
№ 1	25	100	0,127
№ 2	25	100	0,225

Исходя из полученных результатов  $\lambda(T)$  образцов № 2 и 1, вычислены значения относительного температурного эффекта ( $\Delta \lambda / \lambda$ ) при начальной температуре  $T_1=25^{\circ}\text{C}$  и ее значении вблизи минимума кривой  $T_2 = 100^{\circ}\text{C}$  (табл. 3). Из табл. 3 видно, что температурный эффект  $\lambda$  в образце № 2 в 1,7 раз больше, чем в № 1, что соответствует различию исходной  $\lambda$  образцов.

Далее было изучено влияние реакторного излучения различными флюенсами нейтронов  $\Phi$  на теплопроводность сплава. Например, для образца № 3 при росте  $\Phi$  до  $10^{18}$  см $^{-2}$  обнаружено (табл. 4) существенное изменение соответствующих перепадов температур с ростом  $T$  по сравнению с исходным графиком и уменьшение  $\lambda$  в выбранном диапазоне температур.

Табл. 4. Температурная зависимость перепада  $\Delta t$  на стержне и образце № 3 и величины  $\lambda$ , вычисленной по ф-е (1).

№	Тем-ра $t, ^{\circ}\text{C}$	Перепад. на тепломере	Перепад $\Delta t$ в образце	Теплопровод, $\lambda(\text{Вт/м.град})$
1.	25 $^{\circ}$	$n_t - 6,0$	$n_0 - 5,2$	146,6
2.	50 $^{\circ}$	$n_t - 7,0$	$n_0 - 5,9$	124,76
3.	75 $^{\circ}$	$n_t - 5,9$	$n_0 - 4,0$	100,4
4.	100 $^{\circ}$	$n_t - 4,8$	$n_0 - 3,1$	76,47
5.	125 $^{\circ}$	$n_t - 5,0$	$n_0 - 3,5$	82,9
6.	150 $^{\circ}$	$n_t - 3,3$	$n_0 - 2,1$	75,35
7.	175 $^{\circ}$	$n_t - 3,6$	$n_0 - 2,5$	82,23
8.	200 $^{\circ}$	$n_t - 4,1$	$n_0 - 2,5$	72,20

Из табл. 4 очевидно видоизменение графика, когда сначала действует закона  $1/T$ , затем - некоторый перегиб в области, где в исходных материалах имелся четкий минимум, и в дальнейшем с ростом  $T$  практическое отсутствие снижения параметра. Данная температурно-дозовая кинетика теплопроводности хорошо просматривается на следующем рисунке. Из рис. 2 видно изменение формы графика, резкое уменьшение первоначальной величины  $\lambda$  при  $T_1-T_2$  и около  $100^{\circ}\text{C}$  появление излома и достижение уровня стабилизации.

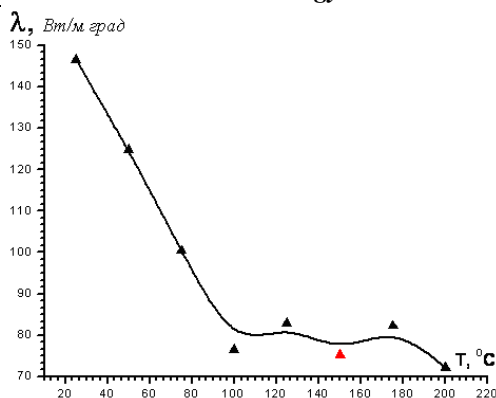


Рис. 2. Влияние облучения образца № 3 на его теплопроводность.

Последующее пребывание пластин (№ 4) в каналах реактора до сравнительно большой дозы (флюенс быстрых нейтронов  $\Phi=10^{19}$  см<sup>-2</sup>) привело к дальнейшему преобразованию формы кривой. Результат соответствующих вычислений теплопроводности для набора температур показывает снижение величины  $\lambda$  при  $T_1$  по сравнению с исходным образцом и облученным дозой  $10^{18}$  см<sup>-2</sup>, наличие экстремумов около  $70^\circ\text{C}$  и  $T_3=125^\circ\text{C}$ . Заметим, что первый в данном образце проявляется в виде максимума, природа которого пока неизвестна. Поскольку имеется рассеяние фононов создаваемыми реакторным излучением дефектами решетки, то оно должно привести к большим изменениям теплопроводности облученного сплава, не исключено, что оно может привести к смещению к высоким  $T$  низкотемпературного максимума на  $\lambda(T)$ . Относительно второго экстремума следует отметить, что его местоположение смещено в сторону повышенных температур  $T_3$ , а глубина этого минимума сравнительно небольшая, ибо оценка радиационного эффекта относительного изменения значения ( $\Delta \lambda / \lambda$ ) при начальной температуре и ее значении вблизи минимума кривой показала, что он составляет порядка 0,1. Итак, после некоторого снижения параметра при повышении  $T$  от  $70^\circ\text{C}$  до  $125^\circ\text{C}$  начинается рост  $\lambda$  в области  $125^\circ\text{C}-150^\circ\text{C}$  с последующей ступенькой замедления терморadiационного процесса.

Проведен сравнительный анализ впервые полученных экспериментальных результатов теплопроводности для исходных образцов сплава САВ-1 при комнатной температуре и образцов, облученных набором доз нейтронного излучения, сделан вывод о том, что по мере обработки пластин в каналах реактора численная величина исследуемого параметра уменьшается. Результаты вычислений показали, что в выбранном интервале температур ( $25-220^\circ\text{C}$ ) закономерность терморadiационного изменения теплопроводности немонотонная, она характеризуется наличием экстремальных точек при определенной температуре и зависит от дозы облучения. Согласно имеющимся данным, в необлученных сплавах на температурной зависимости теплопроводности при  $T>T_1$ , действительно, обнаружено ощутимое снижение теплофизического параметра, допускается наличие небольшого максимума (плато) около  $60-70^\circ\text{C}$ , а также прохождение кривой через минимум при  $T_2$  и в дальнейшем - повышение  $\lambda$ .

Поскольку в литературе нет сведений о значении данной характеристики в сплаве САВ-1 до и после его обработки, то мы провели сравнение с металлическим алюминием, в котором зависимость  $\lambda(T)$  имеет немонотонный ход с характерными экстремумами около  $60-70^\circ\text{C}$  и  $100^\circ\text{C}$ . Сопоставление экспериментально установленной в сплаве закономерности  $\lambda(T)$  с таковой в А1 показало их аналогию, хотя значение  $\lambda$  в металле для рассматриваемого интервала  $T$  гораздо большее ( $200-240$  Вт/(м.К)).

Если учесть, что в элементный состав исследуемого сплава в основном входит алюминий, то можно заключить, что он является определяющим и влияющим на его теплофизические свойства. Что касается снижения величины  $\lambda$  и наличия в исходных образцах минимума около  $100^\circ\text{C}$  и существенное его снижение в образце № 3 (к тому же, оценка относительного радиационного изменения параметра показала, что  $\Delta \lambda / \lambda = 0,4$ ), то можно предположить следующее. Теоретическими исследованиями [6] установлено, что теплопроводность твердых тел особенно чувствительна к примесям, нарушениям и дефектам. Учитывая это, полагаем, что одной из причин наблюдаемой кинетики является наложение на зависимость  $\lambda$  от  $1/T$  дополнительного эффекта, связанного с изменением числа дорадиационных (ростовых) неоднородностей в материале, отжигом части неструктурных примесей и образованием дефектов решетки в условиях его терморadiационной обработки.

Если учесть данные снятых растровых картин об изменении структуры сплава при  $\Phi=10^{19}$  см<sup>-2</sup> [7], то отмеченный эффект снижения  $\lambda$ , наличие минимума при  $T_3$  и его последующий рост, по-видимому, обусловлен изменением как элементного и фазового состава сплава, так и с созданием больших напряжений в результате появления, распада и рассеяния интерметаллических фаз внедрения типа Al-Mg-Si-Fe по всему объему, приводящих к перераспределению соотношения составляющих общей теплопроводности материала как электронной, так и фононной. Все вышеизложенное свидетельствует в пользу предположения о наличии сложного механизма рассмотренного в работе явления переноса тепла в алюминиевом сплаве.

#### Список литературы

1. Бреховских С.М., Викторова Ю.Н., Ланда Л.М. Радиационные эффекты в стеклах. М.: Энергоиздат. 1982. 184 с.
2. Попов С.Г., Проселков В.Н. Теплоемкость в двухфазных областях бинарных сплавов // Атомная энергия. 2005, т. 99, в. 1, с. 13-25.

3. Скобельцина Т.Н., Юрченко В.Г., Большаков В.И. и др. Теплопроводность быстрообъемной теплоизоляции // Там же. В.3, с. 236-238.
4. Бубнова Т.А., Ионайгис Р.Р. Опускное течение воздушных смесей в вертикальных каналах // Там же. 2010. Т. 108, в.3, 138-144.
5. Парфенова Л.С., Орлова Т.С., Картениас Н.Ф. и др. Теплопроводность высокопористого биоуглерода с канальным типом пор // ФТТ. 2009. Т. 51, в. 10. с. 1909-1916.
6. Берман Р. Теплопроводность твердых тел. М.: Мир. 1979г. 286 с.
7. Абдукадырова И.Х., Байтелесов С.А., Салимбаев У.С. О радиационном эффекте в облученных на реакторе КОНСТРУКЦИОННЫХ МАТЕРИАЛАХ // Труды 6 междуна. конф. по РТЭП. 8 -15 авг. 2008г. Томск.. Томск. Россия .2008г. С. 351-354. .

УДК 621.039.51

### **ОПРЕДЕЛЕНИЕ РЕЖИМОВ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ РАСЧЕТНО-ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫМ МЕТОДОМ**

Пахниц В.А., Алейников Ю.В., Попов Ю.А., Прозорова И.В. Токтаганов М.О.

*Институт атомной энергии Национального ядерного центра, г. Курчатов, Казахстан, [Prozorova@nnc.kz](mailto:Prozorova@nnc.kz)*

*Рассмотрены результаты нейтронно-физических расчетов различных конструкций экспериментального устройства, предназначенного для реакторных экспериментов. Результаты расчетов сопоставлены с результатами физических исследований. Показано, что возможно использовать результаты расчетов для выбора режимов проведения испытаний.*

#### **Введение**

Целью расчетно-экспериментальных исследований являлось обоснование конструкции экспериментального устройства и выбор режимов проведения испытаний в реакторе ИГР.

Импульсный графитовый реактор (ИГР) признан незаменимым инструментом для проведения исследований, направленных на обеспечение безопасности ядерных энергетических установок. Исследования, связанные с испытанием петлевых каналов проводятся на реакторе ИГР уже более 45 лет. Основным направлением экспериментальных работ в этой области в течение последних десяти лет является подтверждение работоспособности устройств, обеспечивающих управляемый вывод расплава материалов активной зоны быстрого реактора за пределы активной зоны. При выборе режима проведения реакторных испытаний тепловыделяющих сборок (ТВС) в составе экспериментальных устройств, размещаемых в центральном экспериментальном канале, рассматривается сценарий развития процессов после разрушения ТВС в камере плавления экспериментального устройства.

В работе представлены результаты нейтронно-физических расчетов (НФР) различных конструкций экспериментального устройства, предназначенного для реакторных экспериментов. В ходе работы рассматривались модели экспериментальных устройств, различающиеся обогащением топлива, количеством твэлов и конструктивным исполнением. Результаты расчетов сопоставлены с результатами физических исследований на макете, практически полностью повторяющем экспериментальное устройство.

#### **Экспериментальное устройство для моделирования процессов плавления**

В качестве примера рассмотрим НФР, проведенные при подготовке для реакторных исследований экспериментального устройства (ЭУ), схема которого показана на рисунке 1. Оно предназначено для моделирования процесса разрушения расплавленным топливом стенки камеры плавления и стенки направляющей трубы регулирующего стержня, а также нижней опорной плиты направляющей регулирующего стержня в ходе развития тяжелой аварии в реакторах на быстрых нейтронах. В таких реакторах в качестве теплоносителя используется жидкий натрий, для исследования эффектов взаимодействия топлива с натрием в составе ЭУ имеется соответствующая полость с натрием. Одним из основных элементов ЭУ является блок плавления, который состоит из топливной сборки и камеры плавления, разделенная промежуточной стальной стенкой и заполненная натрием.

Первый слой натрия (поз. 1) находится в зазоре между корпусом камеры плавления и разделительной перегородкой, имитирующей направляющую трубу регулирующего стержня. Полость, заполненная натрием (поз. 2), между стенками имитирует внутреннюю полость направляющей трубы регулирующего стержня.

Основным параметром, от которого зависит степень повреждения твэлов в ТВС, является величина выделившегося тепла в твэлах за время вспышки мощности реактора. Энергия, выделяемая в твэле, определяется ядерными процессами, происходящими в нем под воздействием реакторного излучения, как во время облучения, так и на протяжении некоторого времени после него. В целом энерговыделение в твэле прямо пропорционально общему энерговыделению в реакторе за время вспышки. Таким образом, одна из основных задач при выборе режима проведения реакторных испытаний экспериментальных устройств – определение коэффициента (CF), связывающего показания каналов контроля нейтронной мощности реактора с величиной энерговыделения в твэлах экспериментальной ТВС.



$Q_p = Q_{(UO_2)}/CF$  должно составить от 5,2 до 5,4 ГДж. Поскольку максимальное значение  $Q_p$  для реактора ИГР составляет 5,2 ГДж, а погрешность реализации энерговыделения  $\sim 10\%$ , можно сделать вывод, что использование топлива с обогащением 4,4 % в ЭУ не представлялось возможным.

Анализ вариантов с использованием топлива с обогащением 17 % показывает, что величина соотношения CF находится в диапазоне от  $1,925 \times 10^{-6}$  для модели № 1.6 до  $2,181 \times 10^{-6}$  для модели № 1.4. Для реализации таких значений энерговыделения в топливе ЭУ энерговыделение в активной зоне реактора ИГР должно составлять от 1,44 до 1,63 ГДж, что значительно меньше максимального значения энерговыделения в активной зоне реактора ИГР. На основании этого можно сделать заключение о возможности проведения эксперимента с плавлением топлива с обогащением 17 % по изотопу урана с массовым числом 235. В качестве основного компоновочного варианта для проектирования ЭУ выбрана модель №1.7, для которой значение соотношения между энерговыделением в топливе устройства и реакторе составляет  $2,12 \times 10^{-6}$  (кДж / г  $UO_2$ )/(кДж ИГР). С учетом этого значения соотношения энерговыделение в активной зоне ИГР составит 1,50 ГДж.

Проводились нейтронно-физические расчеты вариантов при различном материально – конструктивном исполнении силового корпуса. Рассчитывалось несколько модификаций ЭУ. Основные различия в моделях силового корпуса ЭУ и результаты, приведены на рисунке 3.

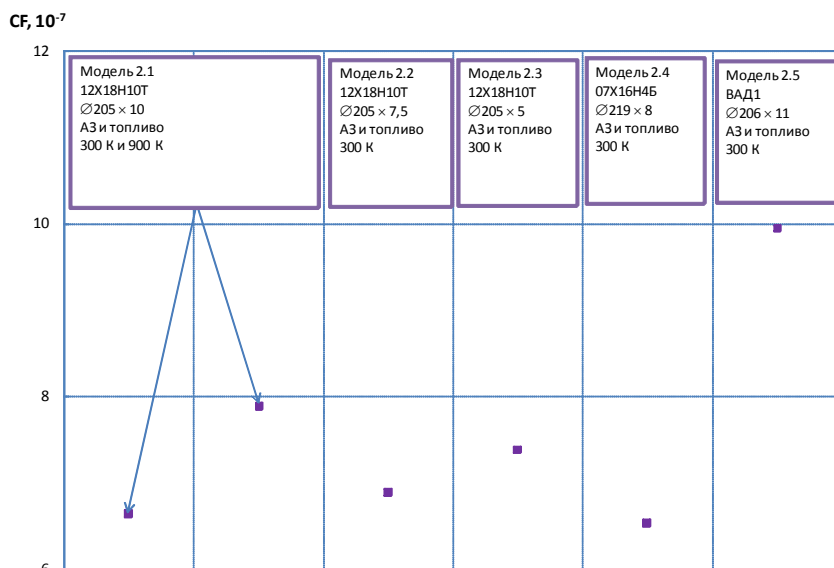


Рис. 3 Основные различия в моделях силового корпуса ЭУ и результаты НФР

Анализ представленных результатов позволяет сделать выводы о том, что при любом варианте конструкции силового корпуса реактор ИГР обеспечивает реализацию в топливе заданного энерговыделения. Поэтому силовые корпуса из стали 12X18N10T были рекомендованы к использованию как наиболее технологичные в изготовлении. Расчеты показывают что в процессе выбора режима работы реактора следует учитывать то, что увеличение температуры активной зоны реактора ИГР приводит к увеличению соотношения энерговыделения в топливе и в реакторе ИГР. В ходе исследований определялось влияние расположения и количества твэлов в топливной сборке. Эти расчеты были интересны тем, что параметр CF уточнялся экспериментально с помощью физических исследований на самом реакторе - была сделана проверка качества модели для решения задачи конкретного класса. Расчеты были проведены для двух моделей физического макета ЭУ, различающихся количеством топлива: для модели 3.1 (рисунок 4 а) с одним твэлом; для модели 3.2 (рисунок 4 б) с 12 твэлами.



Рис. 4 Расчетные модели №3.1 и 3.2

Результаты нейтронно-физических расчетов и экспериментов на реакторе с физическим макетом ЭУ приведены на рисунке 5.



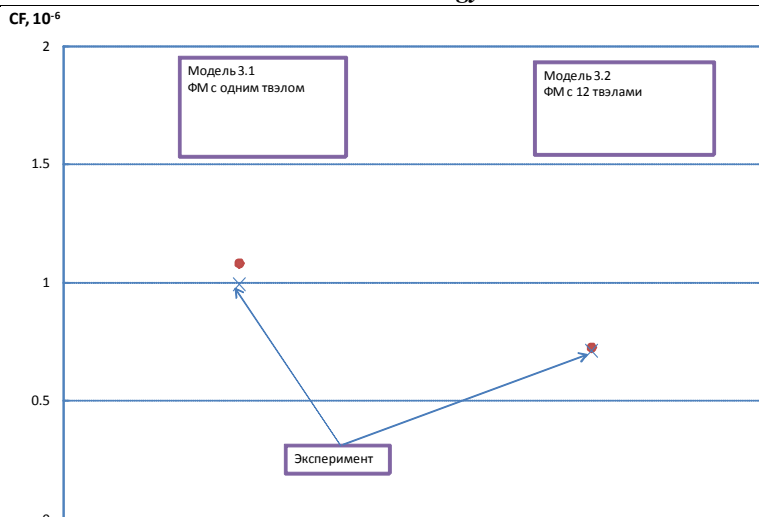


Рис. 5 Результаты нейтронно-физических расчетов

По результатам расчетов были сделаны выводы о том, что система «физический макет ЭУ—реактор ИГР» надкритична во всех рассмотренных случаях. При изменении количества твэлов в физическом макете ЭУ (с одного до двенадцати) значимого изменения значения  $K_{эф}$  не наблюдается,  $CF$  уменьшается в  $\sim 1.4$  раза.

Сопоставление расчетных результатов с экспериментальными показали удовлетворительное согласие и подтвердили корректность выбранной методики расчета, и доказали возможность опираться на результаты расчетов при выборе режимов проведения испытаний.

Очень важно было при выборе режима учесть эффект «просветления реактора» - эффект увеличения плотности потока тепловых нейтронов в ЦЭК при разогреве АЗ реактора. Величина относительного прироста потока тепловых нейтронов в ЦЭК была определена экспериментально по результатам активационного анализа детекторов тепловых нейтронов, облученных при различных значениях энерговыделения и температуры в АЗ реактора. Результаты исследований показали, что величина относительного увеличения флюенса тепловых нейтронов в ЦЭК реактора ИГР составляет приблизительно 2...2,5 % на 1 ГДж энерговыделения в реакторе. Результаты экспериментальных исследований изменения относительного флюенса тепловых нейтронов в зависимости от значения энерговыделения в АЗ реактора ИГР приведены на рисунке 6.

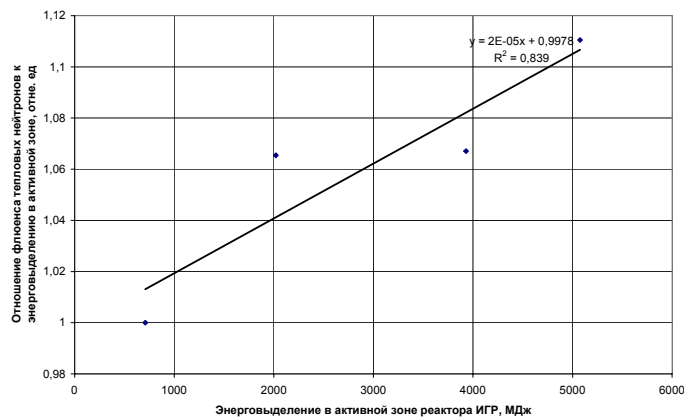


Рис. 6 Зависимость относительного флюенса тепловых нейтронов в ЦЭК от энерговыделения в АЗ

При проведении физических и методических исследований, выполненных с физическим макетом экспериментального устройства, мониторинг энерговыделения в ТВС осуществлялся с помощью специально предусмотренного топливного детектора - монитора. В качестве монитора использовалась таблетка из диоксида урана с естественным обогащением по  $^{235}\text{U}$ . Монитор до проведения испытаний на физических и методических пусках устанавливался в специальном канале в ФМ, позволяющем извлекать монитор для измерений без извлечения ФМ из ЦЭК.

Как видно из рисунка 6, изменение распределения плотности потока нейтронов по объему активной зоны с увеличением энерговыделения в активной зоне реактора ИГР, обусловленное уменьшением эффективных сечений захвата и деления при увеличении энергии тепловых нейтронов в результате их термализации в графите с более высокой температурой, приводит к непропорциональному увеличению флюенса тепловых нейтронов в месте размещения монитора (в пусках 164Ф-15, 164Ф-16, 164Ф-17 и 164Ф-18 вместо монитора для измерений использовался активационный детектор).

При подготовке к эксперименту был исследован характер зависимости энерговыделения в мониторе от энерговыделения в ТВС и АЗ реактора. Диапазон значений энерговыделения в АЗ реактора при проведении исследований составил от 15 до 865 МДж. Отношение между энерговыделением в мониторе и энерговыделением в реакторе, установленное с использованием монитора из необогащенной двуокиси урана, имеет линейный характер.

Это означает, что при энерговыделении в реакторе, не превышающем 865 МДж, перераспределением плотности потока тепловых нейтронов по активной зоне реактора, обусловленным ее разогревом, можно пренебречь.

Принимая, что энерговыделение в ТВС пропорционально флюенсу тепловых нейтронов, при энерговыделении в реакторе, меньшем или равном 865 МДж, для выбора режима работы реактора можно использовать следующее соотношение между энерговыделением в ТВС и в реакторе:

$$E_{TBC} = 0,684 \times 10^{-6} \times E_{\text{реактора}}, \quad (1)$$

где:  $E_{\text{твс}}$  – энерговыделение в ТВС, кДж/г  $\text{UO}_2$ ;  $E_{\text{реактора}}$  – энерговыделение в реакторе, кДж.

В процессе подготовки испытаний была сделана оценка влияния изменения температуры топлива и его перемещения на основные нейтронно-физические параметры реактора, в частности на величину отношения между энерговыделением в ТВС и энерговыделением в реакторе. Полученные результаты нейтронно-физических расчетов, выполненных для системы «экспериментальное устройство – реактор ИГР без стержней системы регулирования» для активной зоны с температурой 1300 К и для топлива ТВС при температуре 300 К и 3120 К показали, что разогрев топлива практически не влияет на соотношение энерговыделения в топливе и в реакторе (Таблица 3). Это означает, что при энерговыделении в реакторе, большем 865 МДж, соотношение энерговыделения будет иметь вид:

$$E_{TBC} = 0,684 \times 10^{-6} \times E_{\text{реактора}} \times \left[ 1 + 2 \times 10^{-8} \times (E_{\text{реактора}}^* - 865000) \right], \quad (2)$$

где:  $E_{\text{твс}}$  – энерговыделение в ТВС, кДж/г  $\text{UO}_2$ ;  $E_{\text{реактора}}$  – энерговыделение в реакторе, кДж.  $E_{\text{реактора}}^*$  – безразмерная величина, численно равная энерговыделению в реакторе, выраженному в кДж.

В соответствии с результатами расчетов, плавление топлива и оболочек твэлов произойдет приблизительно через 3.5...4 сек после начала реализации диаграммы изменения мощности. После того, как будет расплавлено топливо и оболочки твэлов, отношение энерговыделения в топливе к энерговыделению в ТВС снизится по сравнению с исходной величиной. Оценка величины изменения отношения энерговыделения выполнена путем сравнения результатов расчетов для гетерогенной компоновки ТВС и для компактной массы топлива, имитирующей бассейн расплава (таб. 1). И в том и в другом случае расчет выполнен для «холодных» реактора и топлива.

**Таблица 3**

Результаты расчета отношения энерговыделения в топливе ТВС к энерговыделению в реакторе ИГР

Компоновка топлива	Температура активной зоны реактора, К	Температура топлива ТВС, К	Эффективный коэффициент размножения, Кэф	Запас реактивности, βэф	CF
Исходная гетерогенная	300	300	1,20299	24,63	$0,7068 \cdot 10^{-6}$
	1300	3120	1,07447	10,12	$0,960 \cdot 10^{-6}$
	1300	300	1,07575	10,28	$0,975 \cdot 10^{-6}$
Компактная масса топлива, имитирующая расплав	300	300	1,20101	24,43	$0,436 \cdot 10^{-6}$

Результаты показывают, что при необходимости сохранения средней величины мощности удельного энерговыделения в топливе на уровне, соответствующем исходной компоновке топлива, следует увеличить мощность реактора приблизительно на 40 % после образования бассейна расплава.

#### **Заключение**

Полученные результаты позволили установить основные соотношения, необходимые для выбора уровня мощности реактора ИГР, обеспечивающие реализацию заданного энерговыделения в ТВС экспериментального устройства.

Был осуществлен процесс тестирования и оценки результатов работы модели. Сопоставление расчетных результатов с экспериментальными показали удовлетворительное совпадение и подтвердили корректность выбранной методики расчета, и доказали возможность использовать результаты расчетов для выбора режимов проведения испытаний.

Эксперимент был успешно проведен в 2008 году. Такие исследования важны тем, что позволяют уточнить существующие расчетные методики и разработать новые, предназначенные для определения параметров тяжелых аварий при обосновании проектов разрабатываемых реакторных установок АЭС и анализе безопасности существующих установок.

#### **Литература**

1. Briesmeister, J. F. MCNP — a general Monte-Carlo Code for neutron and photon Transport / J.F. Briesmeister [et al.]. – Los Alamos, 1997. – LA-7396M.
2. MCNP — a general Monte-Carlo N-Particle Transport Code, Version 5 : Volume I: Overview and Theory / X-5 Monte Carlo Team. – Los Alamos, 2003. – 334 p. – LA-UR-03-1987.
3. «Методика определения энерговыделения в топливных детекторах гамма-спектрометрическим методом при проведении испытаний на реакторе ИГР», инв. № К38051, 2001 г.
4. Горин Н.В., Кандиев Я.З., Козыбаев Р.М. и др. Эффект «просветления» уран-графитового топлива ИГР. – Атомная энергия, 1998, т. 85, вып. 5, с. 419-421



И.Х. Абдукадырова

Институт ядерной физики АН Республики Узбекистан. Ташкент. 100214 Ташкент, пос. Улугбек, ИЯФ АН РУз.

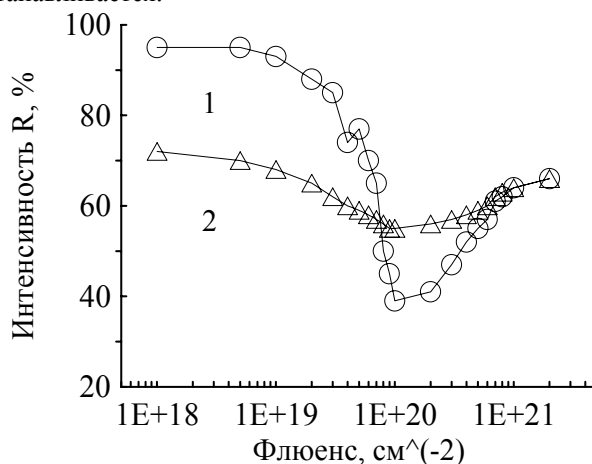
В литературе последних лет можно встретить работы, в которых спектроскопическими методами рассмотрено изменение оптических спектров оксидных кристаллов и стекол при варьировании внешних условий. Среди них надо отметить непосредственно относящиеся к кварцу ( $\text{SiO}_2$ ) работы [1,2]. В первой с помощью спектроскопических методов рассмотрено изменение оптических спектров кварцевых стекол, облученных электронами, вследствие образования радиационных нарушений мостиковых связей, во второй - процесс синтеза псевдокристаллических материалов на основе кремнезема.

В сообщении [3] методом спектроскопии поглощения анализируется изменение коэффициента поглощения и показателя преломления в зависимости от температуры обработки кварца. При этом работ, связанных с радиационным изменением ИК спектров в области нормальных колебаний решетки  $\text{SiO}_2$ , мало, еще в большей степени это касается силовых характеристик материала. Учитывая это, в работе продолжено [4] исследование особенностей влияния больших доз излучения в кристаллическом и стеклообразном кварце, облученных в каналах ядерного реактора, на их состояние структуры, силовые и спектральные параметры в области основных вырожденных колебаний решетки.

В качестве основных образцов выбраны плоскопараллельные пластинки кристалла кварца  $\alpha\text{-SiO}_2$  (образцы № 1) и стекла  $\text{s-SiO}_2$  (образцы № 2). Методом оптического исследования был выбран метод инфракрасной спектроскопии отражения, спектры регистрировались до и после облучения в каналах реактора ВВР-СМ. Флюенс быстрых нейтронов варьировался в пределах  $10^{18}$  -  $10^{21}$   $\text{см}^{-2}$ .

Результаты тщательных исследований динамики решетки кристалла (образцы № 1) в области вырожденных валентных колебаний в процессе действия высоких доз нейтронного излучения были проанализированы и на основе полученной совокупности спектрограмм построена радиационная кинетика ИК спектральных характеристик : интенсивности в максимуме полосы  $1110$   $\text{см}^{-1}$  (рис.1-1).

Для сравнения на этом же рисунке изображена построенная из серии ИК спектров в этой же области частот образцов № 2 дозовая зависимости аналогичной полосы  $1125$   $\text{см}^{-1}$  (рис.1-2). Проведен сравнительный анализ обеих функций  $R(\Phi)$ , который показывает немонотонный характер модификации характеристик моды, наличие в обоих типах материалов экстремальных точек. Из рис.1-2 видно, что для  $R(\Phi)$  сначала в пределах  $10^{18}$  -  $10^{20}$   $\text{см}^{-2}$  происходит уменьшение интенсивности полосы в образце №2 и функция достигает минимума, затем она растер с  $\Phi$  и при  $\Phi=10^{21}$   $\text{см}^{-2}$  ее значение существенно восстанавливается.

Рис.1. Зависимость  $R(\Phi)$  валентной моды кристалла (1) и стекла (2)

В отличие от этого на  $R(\Phi)$  в кристалле обнаружены две экстремальные точки: первая около  $\Phi=5 \times 10^{19}$   $\text{см}^{-2}$ , когда функции свойственна некоторая аномалия, вторая при  $\Phi=10^{20}$   $\text{см}^{-2}$ , когда она проходит через минимум. Как видно, характер модификации коэффициента отражения моды при весьма больших флюенсах в обоих типах пластин аналогичен, при этом минимум на обоих графиках отмечен при одинаковом  $\Phi$ .

Что касается графиков изменения частоты полос  $\nu(\Phi)$ , то в образце №1 имеются две экстремальные точки около  $5 \times 10^{19}$   $\text{см}^{-2}$  и  $10^{20}$   $\text{см}^{-2}$ , а в образце №2 - одна при  $10^{20}$   $\text{см}^{-2}$ . Из сравнения обеих дозовых зависимостей следует, что первый экстремум в №1 в районе средних доз характеризует рост частоты валентной моды, что отражает выше приведенную аномалию  $R(\Phi)$  на данном этапе облучения. В то же время искомая зависимость положения полосы в стекле имеет минимум при  $10^{20}$   $\text{см}^{-2}$ , что совпадает с подобным ходом функции  $\nu(\Phi)$  в кристалле кварца, а также функции  $R(\Phi)$  в обоих типах образцов. Заметим, что имеется еще одна особенность кинетик рассмотренных характеристик моды, когда в процессе радиационного отжига наведенного эффекта величина коэффициента отражения в модификациях  $\text{SiO}_2$ , облученных большими  $\Phi$  ( $10^{21}$   $\text{см}^{-2}$ ), принимает идентичное значение.

Наряду с этим сняты ИК спектры в области более низких частот у  $\nu=400-500 \text{ см}^{-1}$ . Здесь расположена [5] вторая интенсивная полоса в кристалле, связанная с деформационными вырожденными колебаниями связей Si-O-Si у  $475 \text{ см}^{-1}$ . Совокупность снятых в данной области ИК спектров позволила выявить ход функции  $R(\Phi)$ , свидетельствующий о сложном характере модифицирования коэффициента отражения второй моды, заключающемся в интенсивном разрушении мостиковых связей на первом этапе обработки кристалла с последующей релаксацией параметра и появления около  $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$  скачка функции. В последующем функция проходит через минимум ( $10^{20} \text{ см}^{-2}$ ), что завершается частичным ее восстановлением.

Зависимость  $R(\Phi)$  полосы  $480 \text{ см}^{-1}$  во втором материале имеет экстремум около  $4 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , сходная кинетика установлена и для второй характеристики моды  $\nu(\Phi)$ , при этом положение особой точки для функций  $R(\Phi)$  и  $\nu(\Phi)$  совпадает.

Относительно дозовой зависимости  $\nu(\Phi)$  деформационной моды в кристалле заметим, что ее ход в целом близок к таковому для  $R(\Phi)$ , ибо основная экстремальная точка смягчения моды приходится на ту же дозу ( $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ). Отметим еще одну особенность модификации обеих характеристик деформационной моды, которая состоит в отличии местоположения экстремальной точки на зависимостях  $R(\Phi)$  и  $\nu(\Phi)$  в образцах № 1 и 2: в первом случае кривые проходят через минимум около  $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , а во втором - при  $4 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ . Другая особенность заключается в эффекте больших доз, когда при  $10^{21} \text{ см}^{-2}$  обе дозовые зависимости частоты и интенсивности моды достигают сходных значений в обоих типах образцов, когда наблюдается радиационный отжиг и существенное их восстановление.

Таким образом, выявленные нелинейные закономерности радиационного модифицирования спектральных характеристик обеих вырожденных мод в кристаллическом и стеклообразном кварце в процессе действия больших флюенсов нейтронного излучения указывают на их скачкообразное изменение вблизи  $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ,  $10^{20} \text{ см}^{-2}$  и  $4 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , сопровождающееся значительным разрывом и разрушением мостиковых связей, их деформацией и искривлением, приводящим к изменению валентных углов SiOSi и OSiO, что является следствием радиационно-стимулированного изменения фазового состояния модификаций SiO<sub>2</sub> на соответствующих этапах их облучения в каналах ядерного реактора.

Действительно, была проведена параллель с дозовыми зависимостями структурных параметров  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> и  $\gamma$ -SiO<sub>2</sub> [6], согласно которым, на этих зависимостях имеются особые точки (около  $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ,  $10^{20} \text{ см}^{-2}$  и  $4 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ ), связываемые с фазовыми переходами типа  $\alpha \rightarrow \beta$ , кристалл-метамиктное состояние, стекло-метамиктное состояние в них. Если сопоставить эти сведения, полученные прямым рентгенографическим методом, с таковыми, полученными в работе спектроскопическим методом, то можно сделать вывод, что выявленные особенности радиационных кинетик валентных и деформационных колебаний Si-O-Si связей в рассмотренных двух модификациях кварца ( $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> и  $\gamma$ -SiO<sub>2</sub>) обусловлены протеканием в них процессов повреждения и трансформации исходной структуры.

С целью уточнения предположения о связи выявленных экстремальных кинетик радиационного модифицирования спектральных характеристик вырожденных колебаний в  $\alpha$ -фазе кварца с протекающим фазовым переходом применено приближение модели валентных сил [7]. Используя полученные в работе результаты, вычислены силовые константы  $K$ , соответствующие изменению валентных углов OSiO, для исходного и обработанного кристалла.

Основные данные этих параметров сведены в табл.1. Из таблицы видно, что зависимость  $K_1(\Phi)$ , начиная с  $10^{19} \text{ см}^{-2}$ , резко уменьшается и проходит через минимум около  $7 \times 10^{19} \text{ см}^{-2}$ , т.е. имеет особую точку, в дальнейшем направление ее смещения меняется на противоположное. Кроме того, при предельно использованном флюенсе параметр достигает первоначального значения.

Табл. 1. Дозовые зависимости силовых постоянных  $K_1$  и  $K_2$  в  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> и  $\gamma$ -SiO<sub>2</sub> соответственно

$\Phi, \text{ см}^{-2}$	$K_1, \text{ Н/см}$	$K_2, \text{ Н/см}$
0	0,711	0,722
$2 \cdot 10^{19}$	0,694	0,720
$4 \cdot 10^{19}$	0,667	0,693
$7 \cdot 10^{19}$	0,636	0,696
$9 \cdot 10^{19}$	0,694	0,701
$2 \cdot 10^{21}$	0,709	0,708

В другую графу табл.1 сведены полученные в стекле данные константы в зависимости от  $\Phi$ . Выявленный характер функции  $K_2(\Phi)$  подобен таковому в кристалле. Отличие обеих кинетик состоит в различном местоположении особой точки на этих функциях и величины радиационного эффекта (в стекле он гораздо выше). Вместе с тем, при предельной дозе численные величины силовых постоянных в обеих модификациях материала совпадают.

Таким образом, данные по  $K(\Phi)$  подтверждают, что установленные на них особые точки, как и на  $\nu(\Phi)$  деформационных мод в образцах  $\alpha$ -SiO<sub>2</sub> и  $\gamma$ -SiO<sub>2</sub>, связаны с изменением их исходных структур в результате радиационной обработки. Действительно, из табл.1 следует, что на первом этапе облучения материалов происходит резкое уменьшение силовых констант, связанное с деформацией мостиковых связей и изменением валентных углов OSiO.

Данный эффект деформации кремнекислородных связей в кристаллической решетке и сетке стекла и валентных углов молекулы SiO<sub>2</sub>, скорее всего, определяется протекающим индуцированным фазовым переходом. Вполне возможно, что радиационная обработка образцов приводит к существенной флуктуации внутреннего поля, окружающего Si-O связи, и этот процесс отражается на рассмотренном параметре силового поля. По-видимому, изменение силового поля сопровождается накоплением деформации решетки (сетки), которая с ростом упругого

взаимодействия в межфазной области стимулирует завершение при больших  $\Phi$  фазовых перестроек структуры модификаций  $\text{SiO}_2$ .

#### Список литературы

1. Бирюков Д.Ю., Зацепин А.Ф., Кортов В.С. // ФХС. 2001. Т. 27, № 4, с. 503.
2. Витязь П.А., Шелехина В.М., Прохоров О.А. и др. // Изв. АН Белоруссии. Сер. физ.-тех. наук. 2002. № 1, с. 16.
3. Taakuda N., Kaanda T., Yamatasaci S. // Jap. Jour. Appl. Phys. 2003. V. 42, N 3A, p. L264.
4. Abdukadyrova I.Kh. Radiation spectroscopy of neutron-irradiated quartz. Symposium of RMA. Abstracts. May 21-23. 2002. An Arbor. P. 80.
5. Власов А.Г., Флоринская В.А. Инфракрасные спектры неорганических стекол и кристаллов. М.: Наука. 1972.
6. Абдукадырова И.Х., Мухтарова Н.Н. // Узб. физ журнал. 1992. № 1, с. 71.
7. Герцберг Г. Колебательные и вращательные спектры многоатомных молекул. М.:ИЛ. 1949.

УДК 621.635:045

## ПОЛУЧЕНИЕ ПРОМЫШЛЕННОГО ВОДОРОДА

Касаева А.Ж., Казбекова Б.К.

*Каспийский Государственный Университет Технологии и Инжиниринга им. Ш. Есенова*

Одним из важных направлений технического прогресса энергетики, которое будет способствовать устойчивому развитию мирового сообщества, является использование в энергетике водорода, производимого из воды с применением чистых источников первичной энергии таких, как ядерная энергия. Усовершенствованные ядерные установки дадут энергию для производства водорода и опреснение воды, водород обеспечит потребителя энергией в наиболее удобной форме.

В атомной энергетике водород можно использовать для аккумулирования энергии. Одной из проблем работы атомной станции является проблема неравномерной нагрузки и здесь, при “провальных” нагрузках, можно аккумулировать энергию в виде водорода. Или осуществлять энергоснабжение потребителей с помощью водородного энергоносителя, так называемая хемотермическая передача энергии. Процессом, который может быть осуществлен на Земле в промышленных масштабах, является энергетически выгодное получение водорода в электролизе растворов кислот и щелочей при низком напряжении на электродах. В этом случае водород получается за счет внутренней энергии электролита (“охлаждения”), при диссоциации воды, являющейся в свою очередь продуктом “сгорания” водорода.

Понимая экологическую привлекательность водорода, следует понимать, что он является переносчиком энергии, а не ее источником. Водород - самый распространенный элемент на земле, но он химически связан в воде, углеводородах, углеводах и других веществах. Для отделения водорода нужно инвестировать энергию.

В настоящее время водород производится (в основном - из природного газа) для изготовления удобрений, очистки нефти, парового преобразования метана и других промышленных применений. Всемирное производство водорода составляет ~40 млн. т/год. Переход к водородной экономике потребует расширения производства водорода в десятки раз. Экологически привлекательно получение водорода из воды с использованием ядерной энергии, но чтобы такой способ получил широкое применение, должны быть развиты подходящие процессы, позволяющие ему экономически конкурировать с другими существующими методами.

Есть несколько способов получения водорода с помощью ядерной энергии [2]. Используя произведенное ядерной энергией электричество на АЭС с РУ ВБЭР-300, можно, применив электролиз, разделить воду на водород и кислород. Если электролиз производить при помощи высокотемпературного пара, то полученная из ядерного реактора тепловая энергия может заменить часть электричества, и чистая эффективность (отношение произведенного водорода высокого нагрева (ННВ) к затраченной электроэнергии) увеличится. При термохимических циклах разделения воды можно получать всю входную энергию от произведенного в ядерных реакторах тепла, используя комплексные, движимые тепловой энергией химические реакции разложения воды на кислород и водород, и давать эффективность ~50%.

Установки электролизера коммерчески доступны, в них применяются униполярные и биполярные ячейки, использующие водный раствор гидроксида калия (щелочной электролиз), и ячейки с протонно-обменными мембранами (РЕМ электролиз). В установках на АЭС с РУ ВБЭР-300 будет применяться щелочная технология. Доступны установки различной производительности - вплоть до ~ 1000 кг  $\text{H}_2$  в день, и для увеличения объема производства подобные блоки можно соединять параллельно. Установки большой производительности обычно работают при давлении, близком к атмосферному; полученный водород затем сжимается, чтобы достигнуть давления трубопровода (20-30 атмосфер). Разрабатываются установки с высоким давлением, что делает ненужной компрессию водорода.

Предел чистой эффективности низкотемпературных систем электролиза, производящих водород при трубопроводных давлениях, составляет ~ 99%.

При типичных затратах на производства электричества и электролиз стоимость получаемого водорода высока: 4-6 дол./кг или больше. Полезный для применения в малых масштабах этот способ не может конкурировать с

технологией получения водорода из природного газа, где типичная стоимость водорода равна 1,50 - 1,55 дол./кг. рис.1  
 Зависимость себестоимости, получаемого водорода от затрат электроэнергии на электролиз, указана на рис.2

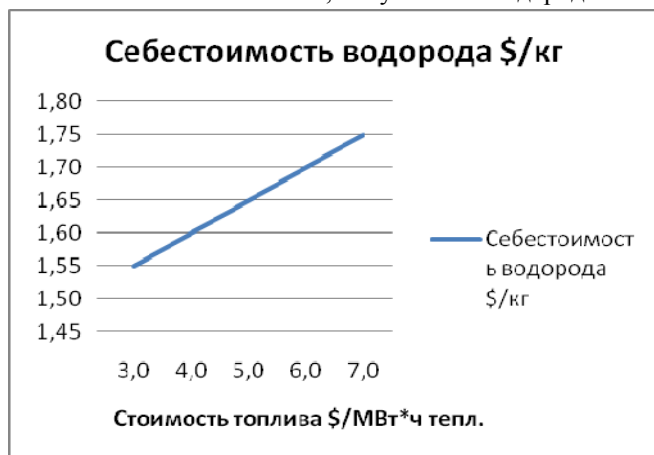


Рис. 1 Зависимость себестоимости получаемого водорода от стоимости ядерного топлива

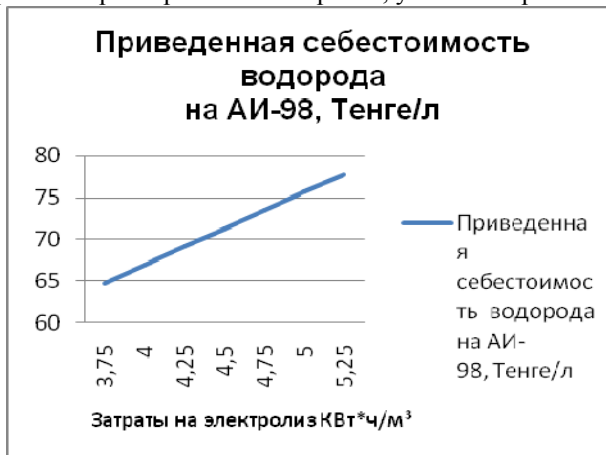


Рис. 2 Зависимость приведенной себестоимости получаемого водорода от затрат электроэнергии на электролиз

Низкотемпературный электролиз применим в ядерной энергетике, но только при наличии большого излишка мощностей. Сейчас энергетические компании удовлетворяют базовый спрос, используя АЭС и другие способы производства электроэнергии низкими эксплуатационными расходами, а пиковые нагрузки покрывают, добавляя блоки, работающие на органическом топливе. Последние имеют высокие топливные затраты, и их работу прекращают, когда они не нужны для покрытия спроса. Низкотемпературный электролиз мог бы, играть роль в крупномасштабном ядерном производстве водорода, если бы энергетические компании имели больше ядерных мощностей, чем нужно для покрытия спроса на базовую электроэнергию, и могли перемещать электричества от сети к установкам электропотребления в период низкого спроса на базовую электроэнергию. (рис.3)

Входами низкотемпературного электролиза являются только вода и электричество. Производство водорода отделено от реактора и может располагаться в другом месте. Но при высокотемпературном электролизе и термохимическом разложении воды часть или весь энергетический вход представляет собой высокотемпературное тепло непосредственно из реактора. Поэтому установки разложения воды тесно связаны с реактором и должны располагаться около него. В таких системах промежуточный контур пере носса тепла помещен между контуром теплоносителя реактора и аппаратурой для производства водорода. Благодаря этому при любой утечке из реакторного контура производство водорода гарантировано от загрязнения, а занятый на этом производстве персонал - от облучения. Водородный завод может быть неядерным предприятием. Промежуточный контур также изолирует активную зону ядерного реактора от текучих сред водородного производства.

Традиционный электролиз проводится при низкой температуре и атмосферном давлении, и позволяет получать водород с выходом до 80% от энергозатрат. Современные технологии позволяют использовать новые материалы для электродов и мембран, тем самым повышая эффективность процесса. Также стоит отметить последние разработки по высокотемпературному электролизу и электролизу высокого давления, которые позволяют использовать дополнительные источники энергии и тем самым повышать эффективность процесса.

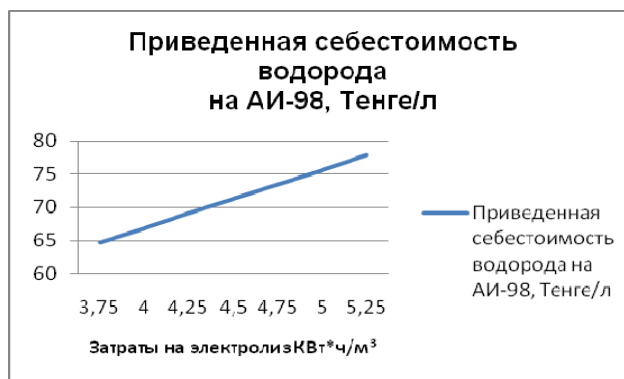


Рис. 3 Зависимость приведенной себестоимости получаемого водорода от стоимости ядерного топлива

Электролиз воды наиболее известный и хорошо исследованный метод получения водорода. Он обеспечивает получение чистого продукта (99,6-99,9 % H<sub>2</sub>) в одну технологическую ступень. Однако в производственных затратах стоимость электрической энергии составляет примерно 85,5 %. Электрохимический метод получения водорода из воды обладает такими положительными качествами как высокая чистота получаемого водорода – до 99,99% и

выше; возможность получения ценнейших побочных продуктов – тяжелой воды и кислорода и общедоступность и неисчерпаемость сырья – воды.

Во всех процессах получения водорода разложением воды, в качестве побочного продукта получают значительные количества кислорода. Это даст новые стимулы его применения. Он найдет свое место не только как ускоритель технологических процессов, но и как незаменимый очиститель и оздоровитель водоемов (тепловое загрязнение промышленных прудов и развитие сине-зеленых водорослей), промышленных стоков.

Например, если сегодня для получения 1 м<sup>3</sup>/ч (90 г/ч) водорода из воды в электролизере, работающем на 25 %-водном растворе едкого натрия (NaOH) или 34% - водном растворе едкого калия (KOH), с использованием никелевых электродов, требуется мощность 4—5 кВт, то для электролизера, установленного на ТОО «МАЭК-Казатомпром» типа СЭУ-40, требуемая мощность составляет 2,7—3,3 кВт • ч/м<sup>3</sup>, т. е. затраты электроэнергии уменьшены в 1,5 раза. В ближайшие же годы следует ожидать появления и таких электролизеров производительностью 100 м<sup>3</sup>/ч. Параметры электролизера СЭУ-40 указаны в таблице 1.

Таблица 1. Основные параметры и размеры промышленного электролизера на ТЭЦ-3

Наименование параметров и размеры	СЭУ-40
Количество диафрагменных рам, шт.	100
Сила тока, подводимая к электролизеру, ампер	1000
Напряжение на электролизере, вольт	215
Напряжение на одну ячейку электролизера, вольт	2,1
Рабочее давление, кгс/см <sup>2</sup>	10
Рабочая температура, 0С	85±5
Чистота газов, %	
а) водорода	99,7
б) кислорода	99,5
Производительность, м <sup>3</sup> /час	
водород	40
кислород	20
Среда	едкая щелочь, водород, кислород
Емкость электролизера, м <sup>3</sup>	1,3

Наиболее целесообразно использование атомной энергии для производства водорода в связи с ее низкой себестоимостью и возможностью использовать в часы наименьшего энергопотребления в энергосети. Особенности выгоды дает использование высокотемпературных реакторов, позволяющих осуществлять прямое разложение воды на водород и кислород

Проведенные исследования на математической модели проектируемой для строительства в г. Актау АТЭЦ с реактором ВБЭР-300, электрической мощностью 300 МВт, опреснительным комплексом 20 000 м<sup>3</sup>/сут и установкой по производству водорода 400 м<sup>3</sup>/час, показали, что себестоимость получаемого водорода находится в пределах 1,5...1,8 US\$/кг, что сопоставимо с ценами на бензин марки АИ-96 – АИ-98 по теплотворной способности.

Рекомендуется при проектировании АТЭЦ для города Актау рассмотреть вопрос о строительстве экспериментального участка по производству водорода для использования его в качестве топлива для автотранспорта.

#### Литература

1. Дементьев Б.А. Ядерные энергетические реакторы.-М., Атомиздат, 1984, 259с.
2. Е.Л.Ананьев «Атомные установки в энергетике».-М., Атомиздат. 1978, 301с.
3. И.Н.Дюсембаев, Д.У.Сугиров «Здания и оборудования тепловых и атомных электростанций» - Астана, Фолиант. 2001,150с.
4. Кашеев В.П. «Ядерные энергетические установки» - Минск: «Вышейша школю», 1989, 188с.
5. Справочник. "Водород. Свойства, получение, хранение, транспортирование, применение".-М, "Химия" - 1989., 386с.
6. Коллиер Дж., Хьюитт Дж. «Введение в ядерную энергетику» - М: «Энергоатомиздат», 1989г.

УДК 621.039.6

### ПОСЛЕЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ СОСТОЯНИЯ МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ ИТЭР

Бакланов В.В., Дерявко И.И., Кукушкин И.М., Коянбаев Е.Т., Ударцев С.В.  
Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатова, Казахстан

#### Введение

На сегодняшний день безусловно актуальными являются вопросы изучения поведения трехслойной конструкции первой стенки (ПС) реактора ИТЭР в условиях экстремального термического воздействия [1]. Проблемным соединением в такой конструкции является пара бериллий–бронза, технология изготовления которой на

настоящий момент еще недостаточно отработана. Одна из таких технологий соединения указанных материалов методом диффузионной сварки была предложена Усть-Каменогорским АО «Ульбинский металлургический завод».

Для проведения термических испытаний образцов соединения материалов ПС в Институте атомной энергии НЯЦ РК была создана специальная установка индукционного нагрева ВПЧ-100. Объектом испытаний в этой установке были выбраны изготовленные в АО «УМЗ» три макета ПС, в которых получение неразъемного соединения слоев было осуществлено диффузионной сваркой по методу горячей штамповки.

Данная технология одноосного прессования, разработанная в АО «УМЗ», являлась более простой и дешевой в сравнении с технологией изостатического прессования, принятой в основной концепции ИТЭР, и в случае положительных результатов испытаний она могла бы быть предложена в качестве альтернативной для изготовления первой стенки реактора ИТЭР.

Каждый отдельный макет в рамках программы их испытаний в установке ВПЧ-100 подвергался циклическому термическому воздействию (моделирующему тепловой поток в реакторе ИТЭР) вплоть до момента разрушения соединения бериллий–бронза. По окончании термических испытаний были выполнены материаловедческие исследования состояний каждого из трех макетов.

#### **Объект исследования**

Испытываемые макеты ПС представляли собой следующую трехслойную конструкцию: первый (защитный) слой толщиной 10 мм изготавливался из бериллия марки ТГП-56, второй (теплоотводящий) слой толщиной 22 мм – из никель-бериллиевой бронзы марки С17510, третий слой толщиной 49 мм – из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т. Каждый из трех макетов имел свою конфигурацию соединений бериллиевых, бронзовых и стальных слоев. В первом макете соединения слоев выполнялись по плоским поверхностям, во втором и третьем – по плоским поверхностям с замковым зацеплением возле боковых торцов. Слои в каждом макете были соединены методом горячей штамповки. При этом температура, давление и время выдержки под давлением варьировались от макета к макету.

На рис. 1 показаны поступившие на испытания заготовки макетов первой стенки после изготовления в АО «УМЗ», а также подготовленный к проведению экспериментов один из макетов (приварены элементы коммуникации трактов охлаждения) непосредственно перед размещением его в рабочей камере установки ВПЧ-100.



Рис. 1. Заготовки макетов первой стенки (слева) и один из макетов, подготовленный к термическим испытаниям (справа)

#### **Исследования послезэкспериментальных состояний макетов**

Завершением термического испытания для каждого из макетов ПС стало его разрушение по соединительному слою на границе бериллия и бронзы. В случае первого макета разрушение его на два фрагмента было установлено визуально: после вскрытия рабочей камеры ВПЧ-100 бериллиевый слой свободно отделился от остальной части макета. В случае второго и третьего макетов разрушение было зафиксировано по показаниям термопар, расположенных в бериллиевых и бронзовых слоях: при нагреве наблюдался значительный перепад температур на границе раздела слоев, указывающий на то, что произошло нарушение тепломеханического контакта.

При этом было установлено существенное различие в поведении второго и третьего макетов в ходе термических испытаний, заключавшееся в количестве экспериментов, приводящих к разрушению проблемного соединения. Соединение бериллий–бронза у второго макета выдержало несколько десятков циклов нагрева-охлаждения, а это же соединение у третьего макета, не обладавшее требуемым качеством тепломеханического контакта, разрушилось уже на первом цикле. Целостность обоих макетов (отсутствие полного разделения на фрагменты) сохранилась только за счет замковых зацеплений возле боковых торцов бериллия и бронзы [2].

С каждым из макетов ПС был проведен комплекс материаловедческих исследований, включавший в себя визуальный осмотр, фотографирование, металлографическое и рентгенографическое изучение структурного и фазового состояния материалов макета. Поверхности разрушения бериллиевого и бронзового слоев у первого и у второго макетов имели весьма схожий вид. На рис. 2 для каждого из этих макетов показаны ответные друг другу «более бериллиевые» и «более бронзовые» поверхности разрушения.

Дифрактометрические исследования материалов, взятых с поверхностей разрушения со стороны бериллия и со



стороны бронзы, позволили выявить, что разрушение первого макета произошло в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой по местам залегания интерметаллида  $Be_2Cu$  со стороны бериллия.

Металлографическое изучение структуры материала поверхности разрушения показало, что на кромке поверхности поперечного среза бериллиевого фрагмента легко выявляется отличающийся по твердости промежуточный слой, содержащий интерметаллиды (рис. 3).



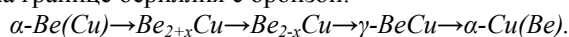
Рис. 2. Поверхности разрушения со стороны бериллия и со стороны бронзы у первого (слева) и у второго (справа) макетов первой стенки



Рис. 3. Поперечное сечение вблизи границы бериллиевого слоя макета

Таким образом, причины разрушения первого макета связаны как с особенностями структуры и состава никель-бериллиевой бронзы, так и с возникновением в промежуточном диффузионном слое между бериллием и бронзой интерметаллидных фаз, охрупчивающих материал этой зоны, что при термических испытаниях создавало условия для возникновения трещин под влиянием термических напряжений, возникающих из-за различий в коэффициентах термического расширения у матричных и интерметаллидных фаз.

По результатам рентгенографических исследований материалов на поверхностях разрушения второго макета со стороны бериллия и со стороны бронзы была установлена следующая последовательность структурных слоев в переходном диффузионном слое на границе бериллия с бронзой:



Следует отметить, что в структуре переходного слоя на границе бериллия с бронзой у этого макета металлографически обнаруживаются нескольких слоев, разделенных четкими границами (см. рис. 4). Со стороны бронзы первым располагается слой, состоящий из смеси фаз  $\alpha-Cu(Be)$  и  $\gamma-BeCu$ . Толщина этого слоя составляет около 25 мкм, а его микротвердость находится в диапазоне 2,5-2,7 ГПа. Далее располагается слой, содержащий фазу  $\gamma-BeCu$  светло-желтого оттенка. Этот слой, имеющий толщину ~15 мкм, разделен посередине неровной серой границей толщиной порядка 1 мкм. Микротвердость фазы  $\gamma-BeCu$  с обеих сторон от неровной границы примерно одинакова и лежит в диапазоне значений 3,2-3,7 ГПа. Микротвердость материала следующего светло-серого слоя (предположительно, это фаза  $Be_{2-x}Cu$ ) установить не удалось ввиду его малой толщины (около 2 мкм). Следующий темно-серый слой материала (предположительно, это фаза  $Be_{2+x}Cu$ ) имеет переменную толщину, увеличивающуюся при приближении к центру макета. Наибольшей толщины (до 10-15 мкм) этот слой достигает в центре макета. В этой же области предыдущий слой ( $Be_{2-x}Cu$ ) практически полностью исчезает.



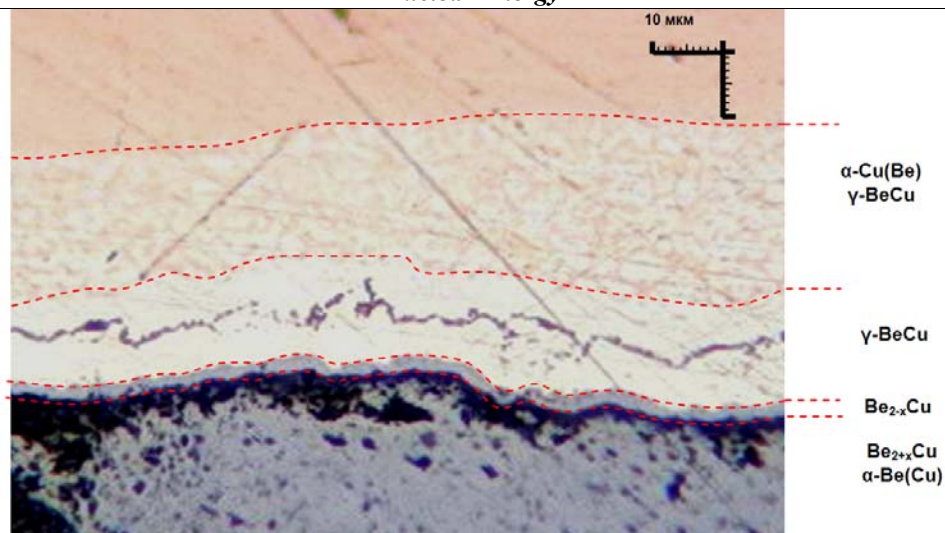


Рис. 4. Микроструктура и фазовый состав материалов второго макета первой стенки в переходном диффузионном слое на границе бериллия с бронзой

Присутствие слоя темно-серой фазы (фаза  $\text{Be}_{2+x}\text{Cu}$ ) между бериллием и остальными слоями металлографически устанавливалось вполне надежно. При этом так же надежно на отдельных участках шлифа (особенно в центральной части макета) между этим слоем и бериллием фиксировалось отсутствие материала, т.е. отслоение бериллия от бронзы. Это означало, что во втором макете ПС, как и в первом, разрушение в диффузионном слое на границе бериллия с бронзой происходило по месту залегания интерметаллида  $\text{Be}_2\text{Cu}$  со стороны бериллия.

Внешний вид обеих ответных поверхностей разрушения (со стороны бериллия и со стороны бронзы) третьего макета ПС представлены на рис. 5. (Для разделения слоев замковые зацепления на боковых торцах были срезаны.)



Рис. 5. Поверхности разрушения третьего макета первой стенки со стороны бериллия (слева) и со стороны бронзы (справа)

Металлографические исследования третьего макета показали что, микроструктура промежуточного диффузионного слоя между бронзой и бериллием однотипна по всей длине макета и состоит из нескольких ярко выраженных слоев. Разрушение макета произошло по одной из границ залегания слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$ : в одних случаях разрушение проходило по границе слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$  со слоем из смеси фаз  $\alpha\text{-Cu(Be)}$  и  $\gamma\text{-BeCu}$ , в других – по границе слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$  со слоем фазы  $\text{Be}_{2-x}\text{Cu}$ . При этом различия в цвете участков поверхностей разрушения определялись тем, на какой из границ слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$  оказалась поверхность разрушения. Если на поверхности разрушения со стороны бериллия, то участки были более темными (с коричневым оттенком), а если на поверхности разрушения со стороны бронзы, – более светлыми. Важно отметить, что толщина переходного диффузионного слоя в третьем макете была значительно меньше, чем в первых двух макетах. Это свидетельствовало о малом времени высокотемпературного воздействия на соединение бериллий–бронза этого макета [3].

Таким образом, можно считать установленным, что диффузионное соединение слоев бериллия и бронзы в третьем макете ПС было нарушено еще до начала термического испытания, а разрушение этого соединения происходило по одной из границ слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$ .

#### **Заключение**

Макеты первой стенки реактора ИТЭР, изготовленные в АО «УМЗ» по одной из технологий горячей штамповки, показали неодинаковую, но в целом низкую ресурсную стойкость в условиях термических испытаний, моделирующих тепловое воздействие плазмы на бериллиевый защитный слой первой стенки ИТЭР.

Послеэкспериментальными исследованиями трех макетов выяснено, что разрушения первого и второго макетов ПС в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой происходили по местам залегания слоя интерметаллидной фазы  $\text{Be}_2\text{Cu}$  со стороны бериллия, а разрушение этого соединения в третьем макета ПС – по одной из границ залегания слоя фазы  $\gamma\text{-BeCu}$ . Основные причины разрушения макетов связаны с термическими напряжениями, возникающими из-за различий в коэффициентах термического расширения у матричных и вторых фаз.

#### **Литература**

1. Чернов В.М., Леонтьева-Чернова М.В., Потапенко М.М. Современные конструкционные материалы для термоядерного реактора. – Тезисы междунар. семина. «Экспериментальные возможности токамака КТМ и программа исследований, Астана, 10-12 окт. 2005 г.». – Курчатов, НЯЦ РК, 2005, с. 36-37.
2. Ударцев С.В., Кулжанов Д.Ш., Дерявко И.И. Экспериментальное исследование поведения первой стенки реактора ИТЭР в штатных и аварийных режимах ее нагрева. – Вестник НЯЦ РК, 2008, вып. 4, с. 50-56.
3. Бакланов В.В., Гановичев Д.А., Дерявко И.И. и др. Экспериментальное исследование поведения плоских трехслойных композиций типа бериллий–бронза–сталь в условиях тепловых режимов, соответствующих эксплуатационным режимам первой стенки реактора ИТЭР. – Докл. междунар. конф. «Ядерная энергетика Республики Казахстан. ЯЭ-2008, Курчатов, 11-13 июня 2008». – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 2008, с. 145-149.

### **ПРОГНОЗИРОВАНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ МОДЕЛЬНЫХ ТВС В ЭКСПЕРИМЕНТАХ НА ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОМ РЕАКТОРЕ ИГР**

Витюк В.А.<sup>1</sup>, Вурим А.Д.<sup>1</sup>, Гайдайчук В.А.<sup>1</sup>, Пахниц А.В.<sup>1</sup>, Алейников Ю.В.<sup>1</sup>, Жотабаев Ж.Р.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>) *Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

<sup>2</sup>) *Национальный ядерный центр РК, Курчатов, Казахстан*

#### **Введение**

Качество реализации заданных параметров облучения модельных ТВС при проведении испытаний на реакторе ИГР зависит от точности определения соотношения мощности энерговыделения в модельной ТВС и в реакторе.

В настоящее время решение задачи определения этого соотношения выполняется по результатам физических исследований с использованием физического макета модельной ТВС, оснащенной набором мониторов энерговыделения и индикаторов потока нейтронов. Энерговыделение в физическом макете модельной ТВС на физическом уровне мощности реактора определяется спектрометрическим методом [1], и полученное соотношение мощности ТВС и мощности реактора ИГР используется для установления параметров работы реактора ИГР на исследовательских пусках. Основными недостатками этого метода являются:

- необходимость проектирования и изготовления физического макета модельной ТВС;
- ограниченные уровни облучения топлива и детекторов и, следовательно, относительно низкий уровень мощности реактора ИГР при проведении физических исследований в сравнении с мощностью реактора при проведении исследовательских пусков;
- низкая оперативность спектрометрического метода определения энерговыделения, обусловленная как длительностью процедуры спектрометрических измерений, так и необходимостью выдержки ТВС после облучения;
- высокая погрешность (не менее 10%) спектрометрического способа определения энерговыделения в мониторах энерговыделения.

В то же время, модельные ТВС поступают на испытания с достаточно развитой системой измерения теплофизических параметров, что позволяет рассмотреть возможность оценки энергетических характеристик ТВС по ее термическому состоянию. Основным преимуществом теплофизического метода калибровки является то, что оценка термического состояния модельной ТВС может быть выполнена практически при любом режиме облучения ТВС, не приводящем к разрушению конструкции ТВС и средств измерения термических параметров. Это означает, что соотношение мощности энерговыделения в ТВС и в реакторе может быть получено для области параметров, близкой к параметрам исследовательских пусков.

#### **Экспериментальное оборудование**

Для проведения внутриреакторных исследований с целью определения соотношения энерговыделения в топливе модельной ТВС и в реакторе ИГР использовался физический макет экспериментального устройства, предназначенного для определения параметров процессов, протекающих в условиях моделирования тяжелой аварии энергетического ядерного реактора с плавлением активной зоны. Конструкция физического макета в точности повторяет конструкцию экспериментального устройства, поэтому результаты определения соотношения между энерговыделением в ТВС физического макета и в реакторе ИГР могут быть использованы для определения параметров работы реактора при проведении исследовательского пуска с экспериментальным устройством.

Внутри физического макета помещалась модельная ТВС, состоящая из 12 экспериментальных твэлов, дистанционированных верхней и нижней решетками (рисунок 1). Каждый твэл состоял из стальной негерметичной оболочки, заполненной в верхней части на длине ~400 мм топливными таблетками из диоксида урана типа ВВЭР-1000 с обогащением 4,4 % по  $^{235}\text{U}$  (активная часть) и в нижней части на длине ~50 мм топливными таблетками с

обогащением 0,72 % (бланкетная часть). Общая масса таблеток в активной части ТВС составила 2018 г, в бланкетной части – 236 г.

При установке экспериментального устройства в центральный экспериментальный канал реактора ИГР обеспечивалось такое положение, при котором центр активной части твэлов ТВС лежал в плоскости, совпадающей с центром активной зоны реактора.

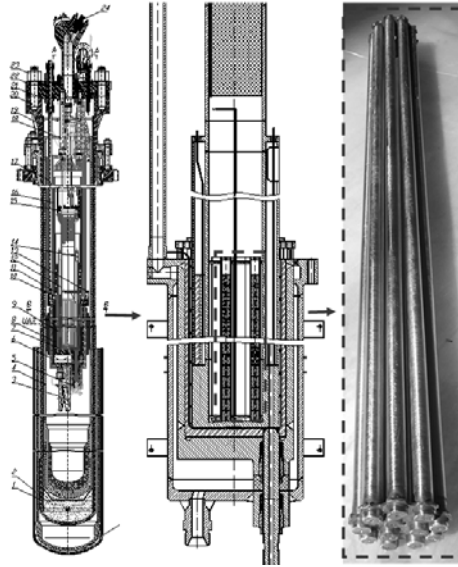


Рисунок 12 – Модельная ТВС в составе физического макета экспериментального устройства

Для измерения температуры элементов конструкции физического макета использовались термопары типа ХК и ХА. В трех измерительных твэлах термопары были установлены во внутреннее отверстие топливных таблеток в направлении сверху вниз. Горячий спай термопары устанавливался во внутреннее отверстие пятой или шестой топливной таблетки, считая сверху топливного столба. Кроме этого, термопары были установлены на наружной поверхности оболочек двух измерительных твэлов (в центральном сечении по высоте топливного столба) (рисунок 2).

В целях исключения основных составляющих систематической погрешности при определении температуры ТВС в экспериментах обеспечивались следующие условия измерений:

- измерения температуры во всех точках ТВС осуществлялось однотипными хромель-алюмелевыми термопарами (ХА), диаметром 1,5 мм;
- регистрация результатов всех измерений осуществлялась с использованием одной информационно-измерительной системы, погрешность преобразования составляла 1 %.

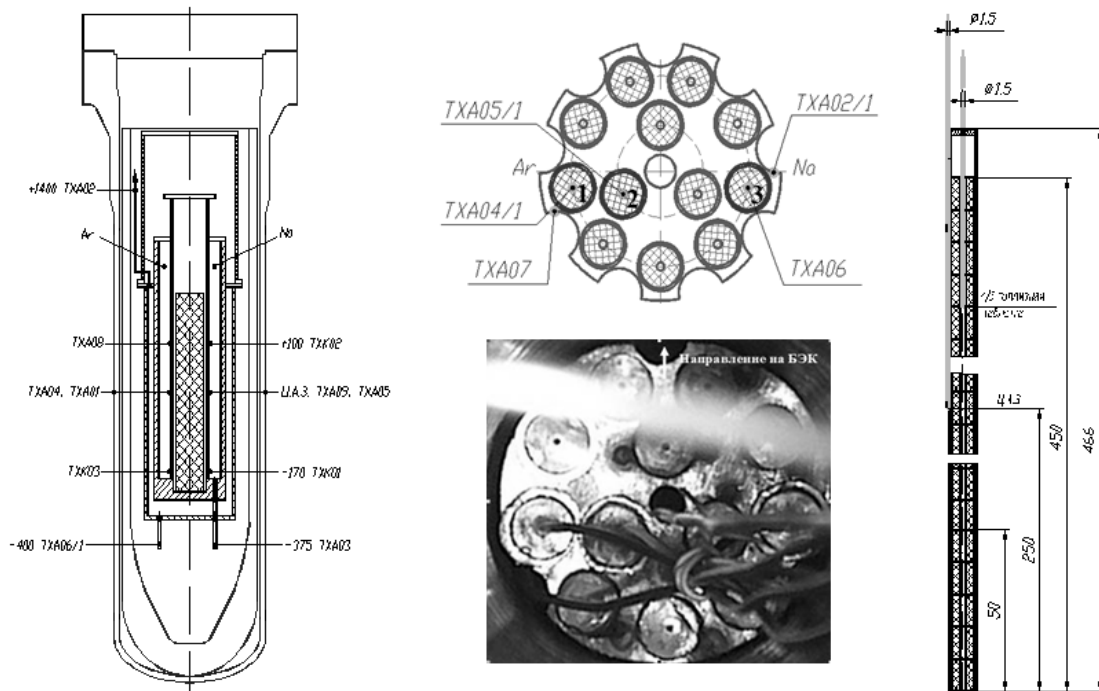


Рисунок 2 - Размещение термопар в физическом макете экспериментального устройства (цифрами 1,2 и 3 на схеме ТВС обозначены измерительные твэлы)

**Результаты исследований**

Исследования с физическим макетом были проведены в серии из четырех экспериментов на реакторе ИГР. Задачами первого эксперимента являлось определение распределения энерговыделения в измерительных твэлах и энерговыделения в ТВС традиционным спектрометрическим методом, задачей остальных трех экспериментов - определение энерговыделения в топливе на основе результатов измерения температуры ТВС и стенки камеры, в полость которой устанавливалась ТВС.

Основные параметры пусков реактора ИГР при проведении исследований были определены по показаниям ионизационных камер реактора и приведены в таблице 1.

Таблица 1 - Основные параметры реактора при проведении исследований

Номер пуска	Режим работы	Максимальное значение/интеграл тока ионизационной камеры, мкА/(мкА·с)	Интегральное энерговыделение в активной зоне, МДж
1	импульс	9,6/206,5	15
2	вспышка	74,7/79,2	325
3	импульс	95,2/124,8	520
4	импульс	127,2/208	865

На рисунке 3 представлено распределение удельного энерговыделения в топливе измерительных твэлов, определенное в соответствии с требованиями методики по результатам первого эксперимента. Профиль энерговыделения в топливе измерительных твэлов в целом повторяет распределение нейтронного потока по высоте активной зоны реактора ИГР. Рост энерговыделения в районе торцов твэлов объясняется повышенным, по сравнению с соседними областями, потоком нейтронов, обусловленным меньшим объемом поглотителя (топлива).

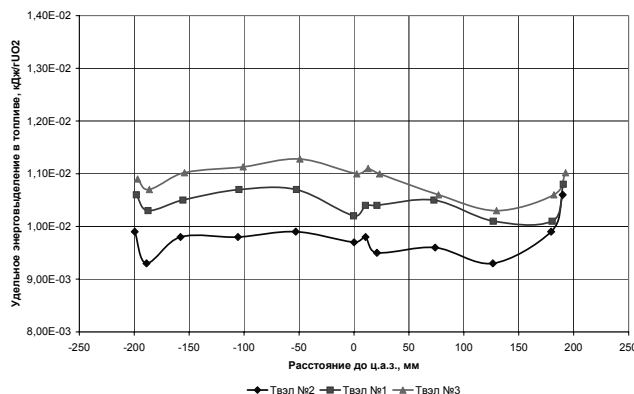


Рисунок 3 - Распределения удельного энерговыделения в топливных таблетках по высоте измерительных твэлов

Усредненные результаты определения энерговыделения в измерительных твэлах и в ТВС по результатам первого эксперимента представлены в таблице 2. Полная погрешность определения удельного энерговыделения в топливных таблетках составляла ~11% при доверительной вероятности  $p=0,95$ .

Таблица 2 - Усредненные результаты определения энерговыделения в измерительных твэлах и в ТВС спектрометрическим методом по результатам первого эксперимента

Номер твэла	Среднее удельное энерговыделение, кДж/г UO <sub>2</sub>
1	$0,104 \cdot 10^{-2}$
2	$0,098 \cdot 10^{-2}$
3	$0,109 \cdot 10^{-2}$
Среднее значение по трём твэлам	$0,103 \cdot 10^{-2}$

На основании полученного распределения удельного энерговыделения в измерительных твэлах были определены высотный ( $K_z$ ) и радиально-азимутальный ( $K_r$ ) коэффициенты неравномерности энерговыделения в точках установки горячих спаев термпар. Высотный коэффициент неравномерности рассчитывался путем нормировки на среднее по высоте твэла значение энерговыделения, определенного для высотного уровня, соответствующего точке расположения горячего спае термпары:

$$K_z = \frac{E_{z_i}}{\bar{E}_z}, \tag{1}$$

где  $E_{z_i}$  - энерговыделение в топливе соответствующего твэла на уровне, для которого определяется высотный коэффициент неравномерности, кДж/г UO<sub>2</sub>;

$\bar{E}_z$  - среднее по высоте твэла значение энерговыделения в топливе, кДж/г UO<sub>2</sub>

Радиально-азимутальный коэффициент рассчитывался путем нормировки энерговыделения в топливе данного твэла для уровня расположения горячего спая термопары на среднее по трем измерительным твэлам значение энерговыделения в точках соответствующих той же высотной отметке:

$$K_r = \frac{E_{r_i}^z}{\bar{E}_r^z}, \quad (2)$$

где  $E_{r_i}^z$  - энерговыделение в топливе данного твэла для уровня  $z$ , кДж/г UO<sub>2</sub>,

$\bar{E}_r^z$  - среднее по трем измерительным твэлам значение энерговыделения для уровня  $z$ , кДж/г UO<sub>2</sub>.

На рисунке 4 приведены характерные показания термопар в процессе исследований на примере результатов измерения температуры ТВС (термопары ТХА2, ТХА4, ТХА5, ТХА7) и стенки камеры во втором эксперименте. Температура ТВС достигает максимального значения к 65-ой секунде эксперимента, при этом наблюдаются отличия в характере изменения показаний разных термопар, обусловленные как неравномерностью энерговыделения по объему ТВС, так и различиями в способах установки горячих спаев.

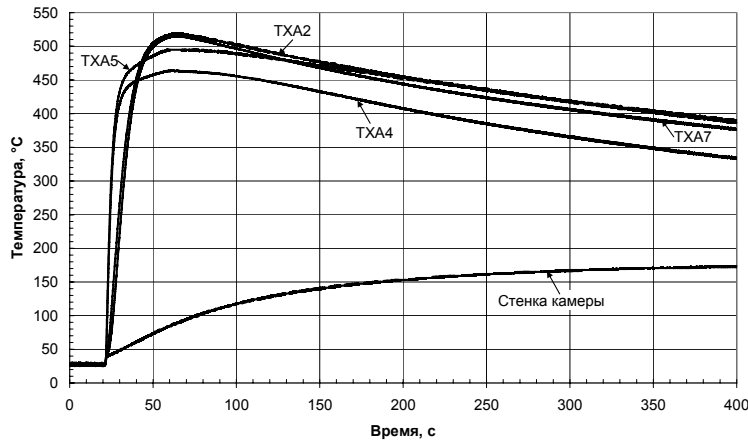


Рисунок 413 - Диаграмма изменения температуры в эксперименте

Методика определения энерговыделения ТВС по теплофизическим параметрам испытаний основывается на решении уравнения теплового баланса для экспериментальной секции в момент достижения максимальной температуры топлива по показаниям термопар.

Количество теплоты, затраченное на разогрев активной части ТВС, рассчитывается по показаниям топливных и оболочечных термопар:

$$Q_{твсi}^{акт} = \frac{m_1(c_1^{макс} \cdot T_i^{макс} - c_1^{нач} \cdot T_i^{нач}) + m_2(c_2^{макс} \cdot T_i^{макс} - c_2^{нач} \cdot T_i^{нач})}{K_r \cdot K_z}, \quad (3)$$

где  $Q_{твсi}^{акт}$  – количество теплоты, затраченное на разогрев активной части ТВС по показаниям  $i$ -ой термопары, Дж;

$T_i^{нач}$  и  $T_i^{макс}$  – начальная и максимальная температура ТВС в эксперименте, зафиксированные по показаниям  $i$ -ой термопары;

$c_1^{нач}$  и  $c_1^{макс}$  – теплоемкость диоксида урана при соответствующих значениях температур, Дж/(кг·К);

$c_2^{нач}$  и  $c_2^{макс}$  – теплоемкость стали при соответствующих значениях температур, Дж/(кг·К);

$m_1$  – масса таблеток диоксида урана в активной части ТВС,  $m_1 = 2,018$  кг;

$m_2$  – масса оболочек твэлов на уровне активной части ТВС,  $m_2 = 0,522$  кг;

$K_r$  и  $K_z$  - значения радиального и высотного коэффициентов неравномерности энерговыделения в точке размещения  $i$ -ой термопары.

Полученные значения  $Q_{твсi}^{акт}$  усредняются:

$$Q_{твс}^{акт} = \frac{\sum_{i=1}^n Q_{твсi}^{акт}}{n}, \quad (4)$$

где  $n$  - количество термопар, по которым осуществлялось измерение температуры ТВС.

Рассчитанное по формуле 4 значение  $Q_{твс}^{акт}$  учитывает тепло, затраченное на разогрев топлива и оболочек твэлов.

В рассматриваемой конструкции устройства и режимах проводимых исследований перенос тепла от ТВС характеризуется, в основном, процессом конвективной теплоотдачи. Процесс конвективного теплообмена в условиях

ограниченного замкнутого пространства и наличия восходящих и нисходящих потоков в устройстве рассматривается как элементарное явление теплопроводности, при этом вводится понятие эквивалентного коэффициента теплопроводности  $\lambda_{эк}$  [2] воздушного зазора между ТВС и стенкой камеры устройства.

Количество тепла, переданного от ТВС стенке камеры плавления за время  $\tau$ :

$$Q_{ум}^{акт} = \frac{\lambda_{эк}}{\delta} \cdot (t_{c1} - t_{c2}) \cdot S \cdot \tau, \quad (5)$$

где  $S$  – площадь поверхности теплообмена между ТВС и стенкой камеры,  $S=0,048 \text{ м}^2$ ;

$\tau$  – время достижения максимальной температуры твэлов в эксперименте, с;

$t_{c1}$  – температура поверхности твэла;

$t_{c2}$  – температура стенки камеры плавления.

Тогда энерговыделение в активной части ТВС определяется как:

$$Q_s^{акт} = Q_{твс}^{акт} + Q_{ум}^{акт}. \quad (6)$$

Энерговыделение в бланкетной части ТВС определяется с учетом предположения о пропорциональности энерговыделения обогащению топлива:

$$Q_s^{бл} = Q_s^{акт} \cdot \frac{k^{бл} \cdot m^{бл}}{k^{акт} \cdot m^{акт}}, \quad (7)$$

где  $k^{бл}$  и  $k^{акт}$  – обогащение топлива по  $U^{235}$  бланкетной и активной части ТВС, %;

$m^{бл}$  и  $m^{акт}$  – масса таблеток в бланкетной и активной части ТВС, кг.

Тогда суммарное энерговыделение в ТВС определяется как:

$$Q_s = Q_s^{акт} + Q_s^{бл}. \quad (8)$$

Результаты определения энерговыделения в ТВС приведены в таблице 3 с указанием стандартного отклонения среднего для соответствующего количества измерений [3].

Таблица 3 - Результаты определения энерговыделения в ТВС

Номер эксперимента			2			3			4		
	$K_z$	$K_r$	$T_1, \text{°C}$	$T_2, \text{°C}$	$Q_{ТВС}, \text{кДж}$	$T_1, \text{°C}$	$T_2, \text{°C}$	$Q_{ТВС}, \text{кДж}$	$T_1, \text{°C}$	$T_2, \text{°C}$	$Q_{ТВС}, \text{кДж}$
ТЭП (положение горячего спая)											
ТХА4 (твэл №1, таблетка, «+150»*)	0,97	1,01	17	468	464	19	687	712	15	1205	1328
ТХА5 (твэл №2, таблетка, «+150»)	0,98	0,95	17	495	520	18	708	775	14	1120	1289
ТХА6 (твэл №3, таблетка, «+150»)	0,96	1,06	-	-	-	19	704	704	15	1155	1220
ТХА7 (твэл №1, оболочка, «0»)	0,98	1,01	17	515	511	18	731	755	13	1073	1154
ТХА2 (твэл №3, оболочка, «0»)	1,01	1,06	17	519	478	18	720	688	14	1020	1007
Среднее количество теплоты, затраченное на разогрев активной части ТВС, кДж			493±8			733±14			1195±51		
Утечки тепла от ТВС, кДж			7			6			8		
Энерговыделение в активной части ТВС, кДж			500±8			739±14			1203±51		
Энерговыделение в бланкетной части ТВС, кДж			10			14			23		
Суммарное энерговыделение в ТВС, кДж			510±8			753±14			1226±51		

\* - отметка «+150» находится на расстоянии 150 мм выше уровня, соответствующего центру активной зоны реактора ИГР, отметка «0» находится на уровне центра активной зоны.

В таблице 4 приведены результаты определения удельного энерговыделения в ТВС, по значениям которых определялось соотношение мощности энерговыделения в ТВС и в реакторе.

Таблица 4 – Результаты определения удельного энерговыделения в ТВС

Наименование параметра	Значение параметра			
	1	2	3	4
Удельное энерговыделение в ТВС по результатам спектрометрических измерений, Дж/г ( $UO_2$ )	10±1	-	-	-
Удельное энерговыделение в ТВС по теплофизическим параметрам испытаний, Дж/г( $UO_2$ )	-	248±4	366±7	596±24
Погрешность определения энерговыделения в ТВС	~10%	~3%	~3%	~5%

Результаты определения удельного энерговыделения в ТВС теплофизическим методом (таблица 4) позволили получить три дополнительных точки на графике (рисунок 5) для определения соотношения энерговыделения в ТВС и в реакторе, являющегося базовым для выбора режима работы реактора ИГР в исследовательском пуске.

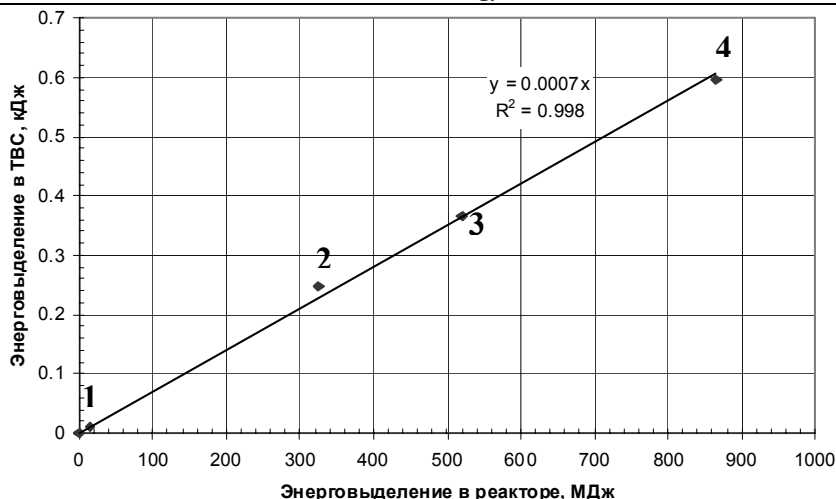


Рисунок 5 – Результаты определения соотношения энерговыделения в ТВС и в реакторе ИГР (1 – спектрометрический метод; 2, 3 и 4 - теплофизический метод)

Принимая, что энерговыделение в ТВС пропорционально флюенсу тепловых нейтронов, для выбора режима работы реактора на исследовательском пуске можно использовать следующее соотношение:

$$E_{TBC} = 0,7 \cdot 10^{-6} \cdot E_{\text{реактора}}, \quad (9)$$

где  $E_{TBC}$  – энерговыделение в ТВС, Дж/г  $UO_2$ ;

$E_{\text{реактора}}$  – энерговыделение в реакторе, Дж.

#### Выводы

По результатам проведенных исследований можно сделать следующие выводы:

- экспериментально подтверждена возможность определения энерговыделения в ТВС по результатам измерений теплофизических параметров с погрешностью не более 5 %;
- применение теплофизического метода калибровки мощности ТВС позволяет получить экспериментально-расчетные значения соотношения энерговыделения в топливе и в реакторе ИГР для уровня энерговыделения в реакторе, при котором применение спектрометрического метода становится крайне затруднительным;
- для выбора режима работы реактора с данной конфигурацией экспериментального устройства базовым является отношение энерговыделения в топливе ТВС (удельного, на грамм  $UO_2$ ) к энерговыделению в активной зоне реактора, равное  $0,7 \cdot 10^{-6}$  без учета поправок на изменение характеристик системы «экспериментальное устройство - реактор ИГР».

#### Литература

1. Определение энерговыделения в топливных детекторах гамма-спектрометрическим методом при проведении испытаний на реакторе ИГР [Текст]: методические указания / ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК; разработ.: М. О. Токтаганов, Ю. А. Попов [и др.]. – Курчатов, 2001. – 16 с. – АК.65000.00.728 МУ. – Инв. № К-38051 от 04.03.2001.
2. Михеев, М.А. Основы теплопередачи. Изд. 2-е стереотип. / М.А. Михеев, И.М. Михеева – М: «Энергия», 1977.–344с.
3. Дж. Тэйлор. Введение в теорию ошибок. Пер с англ. – М: Мир, 1985.- 272 с.

## РАДИАЦИОННОЕ УПРОЧНЕНИЕ И КОРРОЗИЯ НАНОСТРУКТУРИРОВАННОЙ СТАЛИ 08X18N10T, ОБЛУЧЕННОЙ НЕЙТРОНАМИ

Максимкин О.П.\*, Гусев М.Н.\*, Цай К.В.\*, Яровчук А.В.\*, Добаткин С.В.\*\*

\* *Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы*

\*\* *Институт металлургии и материаловедения им. А.А. Байкова РАН РФ, г.Москва*

Наноструктурные металлические материалы во многих случаях удачно сочетают в себе прочностные, трибологические и другие эксплуатационные характеристики, что делает их привлекательными для технологов и проектировщиков [1]. Перевод металлического материала в наноструктурное состояние, как правило, не сопровождается катастрофической потерей его пластических свойств в отличие от многих традиционных способов упрочнения (закалка, прокатка, облучение). Наряду с тем в литературе имеются отдельные сведения о том, что уменьшение размера зерна, т.е. повышение объема разветвленной сети приграничных зон, обедненных радиационными дефектами, должно приводить к значительному уменьшению воздействия нейтронного облучения на реакторные материалы [2]. Это дает основание полагать, что применение наноструктурных материалов в ядерной энергетике позволит продлить ресурс работы ответственных узлов атомных реакторов, в частности, за счет



ослабления таких негативных радиационных эффектов как распухание. Для более детальной проработки данного вопроса необходимо проведение дополнительных комплексных экспериментальных исследований.

Целью настоящей работы явилось выявление закономерностей и особенностей изменений структурно-фазового состояния, механических и коррозионных свойств промышленной нержавеющей стали 08X18H10T в наноструктурном состоянии, облученной нейтронами в реакторе ВВР-К.

#### **Материал и методы исследования**

Объектом исследования служила аустенитная нержавеющая сталь 08X18H10T следующего химического состава (вес.%) С-0.08; Cr-17.0; Ni-10.7; Ti -0.5; S-0.34; Mn -1.6; Fe-основа. Для изготовления наноструктурной стали использовали метод кручения под гидростатическим давлением (КГД) [3]. Полученные образцы имели вид плоскопараллельных дисков диаметром 10 мм и толщиной от 0,3 до 0,45 мм.

Образцы стали с ультрамелкозернистой структурой были разделены на три партии, две из которых помещены в специальные алюминиевые ампулы и облучены в экспериментальных водонаполненных каналах исследовательского реактора ВВР-К при температуре не выше 60°C до флюенсов нейтронов  $5 \times 10^{19}$  и  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> ( $E > 0,1$  МэВ). Перед облучением часть образцов подвергалась восстановительному отжигу при 550°C (1 час) с целью уменьшить содержание ферромагнитной фазы и снизить внутренние напряжения в материале. После облучения проводили комплексные исследования изменений физико-механических свойств образцов с ультрамелкозернистой микроструктурой. Для сравнения в отдельных экспериментах исследовали плоские образцы стали 12X18H10T, аустенизированной при 1050°C, 30 мин, со штатной микроструктурой и размером зерна ~15-20 мкм, облученной нейтронами. Следует отметить высокую радиоактивность облученных стальных образцов, что ограничивало безопасное время работы с ними в пределах 2-3-х минут.

Электронномикроскопические исследования «на просвет» исходных и облученных стальных образцов выполняли с использованием микроскопа JEM 100СХ. Механические испытания «на сдвиг» по схеме Shear-Punch, общепринятой для многих лабораторий [4-5], проводили на универсальной испытательной машине Инстрон-1195 при 20°C и скорости перемещения пуансона 0.5 мм/мм. При помощи стандартного ферроизмерителя Feritoscope MP30 с использованием поправки на толщину пробы [6] определяли содержание ферромагнитной мартенситной  $\alpha'$ -фазы, индуцированной деформацией в метастабильной аустенитной матрице. Металлографические исследования проводили на микроскопе НЕОРНОТ-2. Плотность образцов измеряли методом гидростатического взвешивания на аналитических весах KERN-770 (рабочая жидкость – метиловый спирт). Коррозионную стойкость материала исследовали в ускоренном режиме испытаний в коррозионной среде водного 5% раствора FeCl<sub>3</sub> при 20°C.

#### **Экспериментальные результаты и их обсуждение**

Определение плотности наноструктурной стали. Полученные данные по плотности стальных образцов приведены в таблице 1.

**Таблица 1– Плотность наноструктурной стали 08X18H10T**

Состояние	$\rho$ , г/см <sup>3</sup>	Изменение плотности $\Delta\rho$ , %
Исходная сталь	7.87	–
Наностр.сталь (КГД)	7.72	1.9
Наностр.сталь (КГД, отжиг 550°C, 1 час)	7.80	0.9

Видно, что в результате перевода стали в наноструктурное состояние ее плотность снизилась на ~2%. Возможными причинами данного эффекта являются накопление дефектов в кристаллической решетке в процессе КГД, появление микротрещин, а также мартенситное  $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение в результате деформации. Измерение локальной намагниченности стальных пластин от центра к периферии показало, что зоны повышенного содержания  $\alpha'$ -мартенсита чередуются с зонами, где содержание данной фазы на ~16 об.% ниже. Поскольку количество индуцируемой деформацией  $\alpha'$ -фазы и степень холодной деформации взаимосвязаны, можно заключить, что в результате КГД степень неоднородности деформации по образцу не превышала 16%. В результате отжига (550°C, 1 час) плотность холодно-деформированного материала повысилась до 7.80 г/см<sup>3</sup>, что всего на 0.9% меньше исходного значения.

Электронномикроскопические исследования. Изучение микроструктуры центральной части стальных дисков показало, что непосредственно после КГД-процесса материал имеет преобладающий субмикронный размер кристаллитов (зерен, субзерен), изменяющийся от 0.05 мкм до 0.3 мкм (рис. 1а). Ближе к периферии наблюдали области первичных зерен с сильно фрагментированной субструктурой, отличной от субмикронной (рис.1б).

После облучения нейтронами максимальным флюенсом  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> субмикронный размер в наноструктурной стали 08X18H10T сохранился: структура, выявляемая внутри первичных зерен достаточно однородна, размеры отдельных кристаллитов (рис. 2) изменяются в интервале 0.06 ÷ 0.23 мкм. При этом содержание мартенситной  $\alpha'$ -фазы в центральной части диска значительно превышает содержание аустенитных кристаллитов. По внешнему виду мартенситные кристаллиты не отличаются от аустенитных. Радиационных дефектов (кластеров, петель и пр.) в кристаллитах не выявлено.

На рис. 3-4 приведена микроструктура образцов наноструктурной стали, которые до облучения флюенсом  $5 \times 10^{19}$  н/см<sup>2</sup> подвергались предварительному отжигу при 550°C в течение 1 часа.

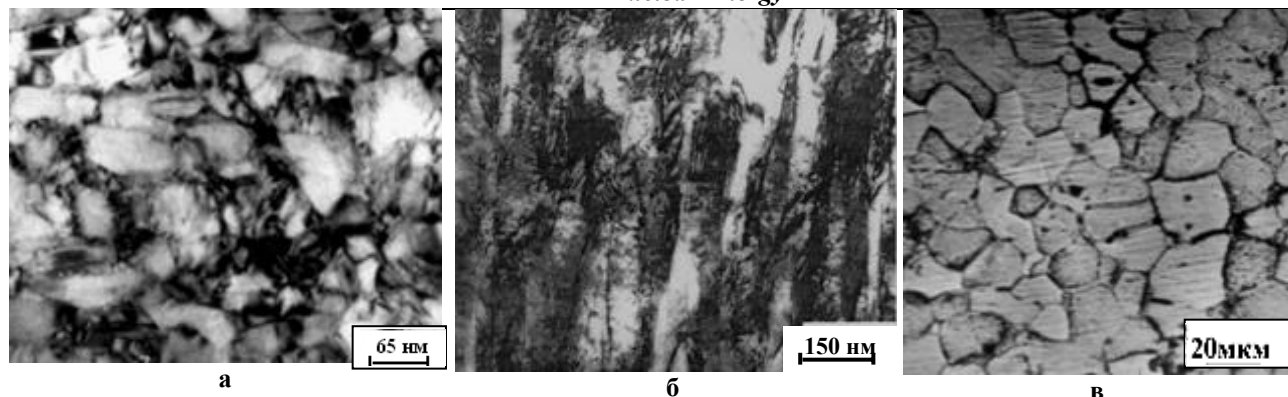


Рисунок 1 — Микроструктура нержавеющей стали типа 18-10 с ультрамелкими (а, б) и штатными размерами кристаллитов (в)

В результате отжига и облучения в микроструктуре стали произошли существенные изменения:

- 1) увеличились размеры отдельных зерен – от нано до микромасштаба; 2) образовались вторичные выделения высокой концентрации;
- 3) наблюдались преимущественно аустенитные зерна.

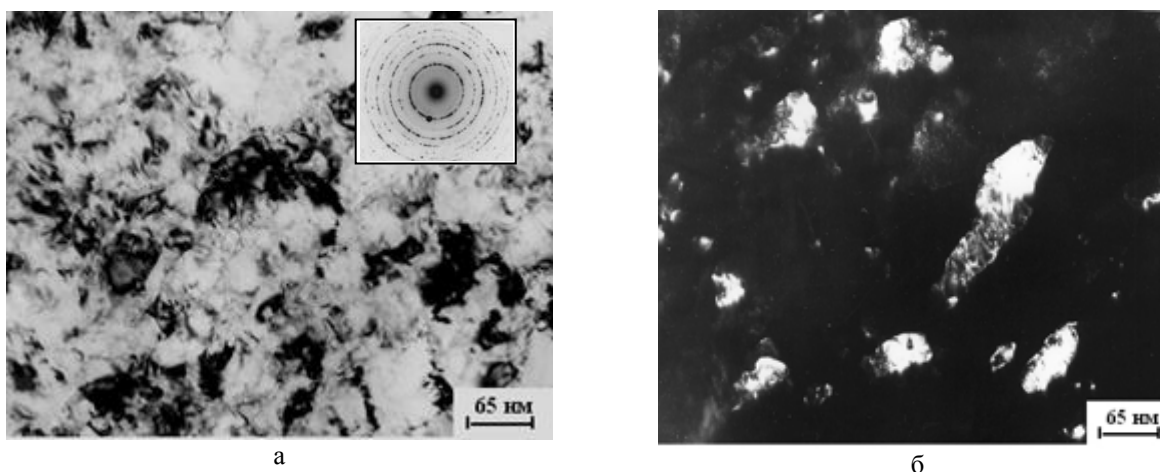


Рис. 2 - Микроструктура стали 08X18N10T после облучения нейтронами ( $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>) (а); кристаллиты  $\alpha'$  - фазы (ОЦК) одной из возможных ориентаций (б).

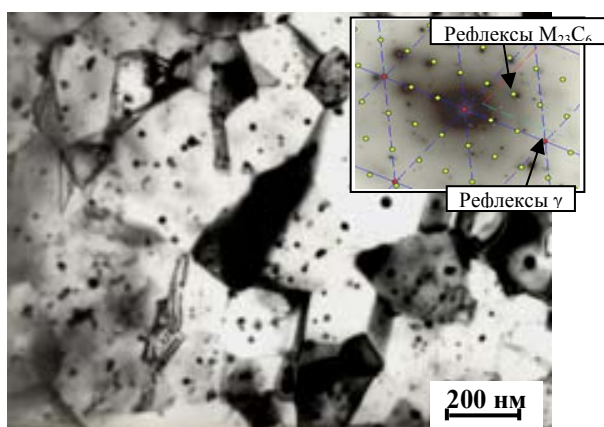


Рис.3 – Микроструктура стали 08X18N10T после отжига при 550°C (1 час) и облучения нейтронами до флюенса  $5 \times 10^{19}$  н/см<sup>2</sup>

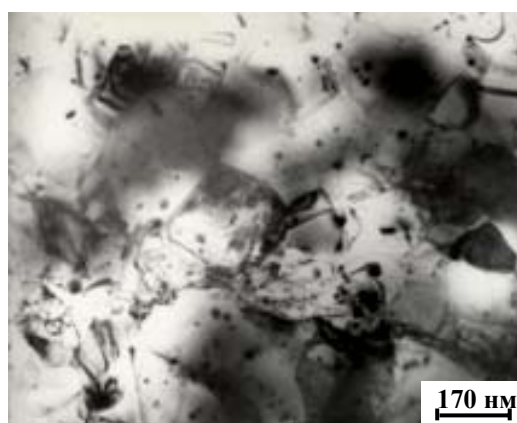


Рис. 4 – Двойники роста и дислокации в аустенитных зернах

При этом микроструктура достаточно однородна и состоит из мелких равноосных зерен с размерами, изменяющимися в интервале 0.5–1.6 мкм (рис.3); присутствуют микродвойники роста (рис.4), а также скопления зернограницных дислокаций и дефекты упаковки. Это указывает на то, что в материале прошли рекристаллизационные процессы, сопровождающиеся исчезновением субзеренных границ, прежде разделяющих области (кристаллиты) с малоугловыми разориентациями. Наряду с тем, в микроструктуре наблюдаются выделения вторичных фаз (рис. 3 и 4) с глобулярной формой частиц, плотность которых составляет  $\sim 1.7 \cdot 10^{20}$  м<sup>-3</sup>, а размеры  $10 \div 125$  нм. Видно, что

наиболее крупные частицы контактируют с границами зерен, что свидетельствует об их первоначальном зарождении в межзеренной области, являющейся эффективным стоком точечных дефектов. Наличие относительно крупных выделений внутри зерен, по-видимому, связано с тем, что границы (субграницы), на которых они образовались, исчезли в результате рекристаллизационных процессов; более мелкие по размеру частицы образуются и растут на дислокациях. Расшифровка электронограмм от выделений показала, что они представляют собой фазу  $M_{23}C_6$  с параметром решетки 1.06 нм.

В то же время сравнение микроструктур, приведенных на рис.1 и 2, позволяет заключить, что даже максимальное облучение нейтронами до  $2 \times 10^{20} \text{ н/см}^2$  не приводит к существенному изменению размера зерна и появлению хорошо различимых радиационных дефектов, которые в данных условиях облучения (низкая температура и повреждающая доза), представляют собой мелкие кластеры дефектов, практически не выявляемые в ПЭМ [7]. Таким образом, возрастание величины зерна в несколько раз, интенсивное образование мелкодисперсных вторичных фаз (вероятнее всего, на участках, где имело место обратное мартенситное превращение  $\alpha' \rightarrow \gamma$ ) и рекристаллизационные процессы в аустенитной матрице есть прямое следствие предварительной термической обработки, а не облучения. Последующее радиационное воздействие ( $5 \times 10^{19} \text{ н/см}^2$ ) лишь только ускоряет рост вторичных карбидов за счет некоторой интенсификации сегрегационных процессов. Интересна сильная реакция холодно-деформируемой стали на термообработку при относительно невысокой температуре  $550^\circ\text{C}$ , что можно связать с высокой плотностью запасенной (латентной) энергии в ультрамелкозернистом материале. Высвобождение этой энергии, в основном, при отжиге и, в некоторой степени, при облучении и приводит, на наш взгляд, по неустановленному пока механизму к повышению локальной температуры образца, что инициирует все вышеуказанные процессы.

Исследование микротвердости облученной наноструктурной стали 08X18H10T

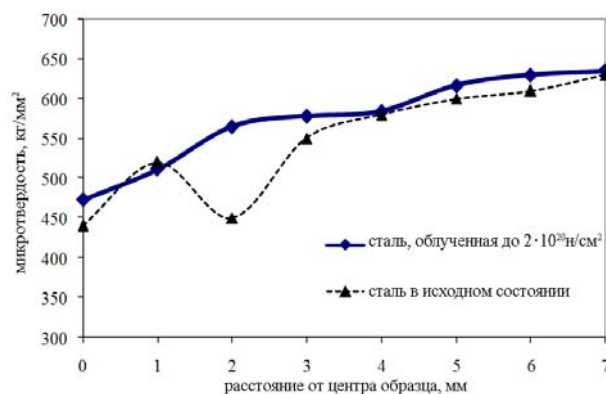


Рис. 5 – Величина микротвердости в зависимости от расстояния от центра образца для необлученной и облученной наноструктурной стали 08X18H10T

На рис. 5 приведены данные по распределению величин микротвердости по радиусу диска в необлученной и облученной наноструктурной стали. Видно, что микротвердость образцов минимальна в центре, где формируется структура из сравнительно равноосных зерен, и нарастает к периферии диска, где достигаются несколько большие деформации, но зерна неравносны и, возможно, имело место формирование микротрещин. Сопоставляя, данные до и после облучения, можно видеть, что, в целом, значения микротвердости в результате воздействия нейтронов изменились незначительно.

**Результаты механических испытаний по методу Shear-Punch наноструктурной стали 08X18H10T**

Типичные диаграммы в координатах «нагрузка, кг - перемещение пуансона, мм», показаны на рис.6, а в таблице 2 приведены значения предела текучести «на сдвиг» ( $\tau$ ) и «на одноосное растяжение» ( $\sigma_{02}$ ). Для получения величины  $\sigma_{02}$  использовали полученную ранее корреляционную зависимость « $\sigma_{02} - \tau$ » [8]. Как следует из таблицы 2, предел текучести наноструктурной стали в результате нейтронного облучения изменился крайне незначительно по сравнению с его величиной до облучения.

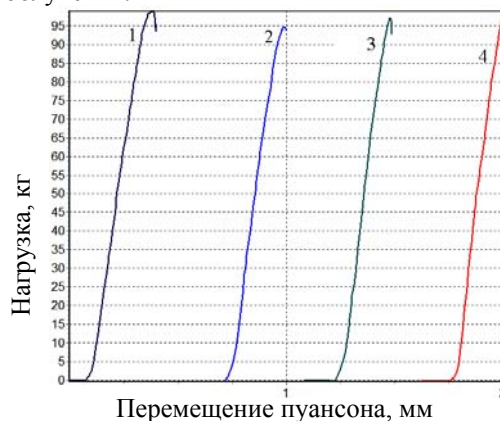


Рис. 6 – Типичные кривые в координатах «нагрузка, кг – перемещение пуансона, мм» (обозначения образцов см. в таблице 2)

Таблица 2 – Влияние нейтронного облучения на предел текучести наноструктурной стали 08X18H10T

Код образца	Состояние	Флюенс, н/см <sup>2</sup>	$\tau_{\text{т}}$ , кг/мм <sup>2</sup>	$\sigma_{02}$ , МПа
Исх.	исходное наноструктурное	0	75	1400±140
1	наноструктурное + отжиг 550°C, 1 час	$2 \cdot 10^{20}$	78	1460±140
2	наноструктурное + отжиг 550°C, 1 час	$5 \cdot 10^{19}$	76	1400±140
3	наноструктурное	$2 \cdot 10^{20}$	77	1440±140
4	наноструктурное	$5 \cdot 10^{19}$	70	1280±140

В то же время следует отметить некоторое снижение  $\sigma_{02}$  для образца, облученного до  $5 \times 10^{19}$  н/см<sup>2</sup>, что, в сопоставлении с данными электронной микроскопии, можно объяснить увеличением размера зерна в результате предварительного отжига 550°C, 1 час. Фактически эффекты, обусловленные облучением, не выходят за пределы разброса, ожидаемого при Shear-Punch-испытаниях (5-8%). Полученные данные свидетельствуют о высокой стойкости наноструктурной стали под облучением.

#### Обратное мартенситное $\alpha' \rightarrow \gamma$ - превращение при отжиге наноструктурной стали 08X18H10T

Наноструктурные стальные образцы (необлученный и облученный нейтронами) подвергали изохронным отжигам (30мин) в интервале температур 400-800°C. Как видно из рис. 7а, при температурах отжига более 500°C наблюдается снижение содержания  $\alpha'$ -мартенсита в обоих образцах. В то же время обращает на себя внимание тот факт, что для образца №2 (см. таблицу 2) количество  $\alpha'$ -фазы прежде, чем уменьшиться, несколько возрастает в районе температур отжига 400-450°C. Отметим, что эффект аномального возрастания содержания мартенситной  $\alpha'$ -фазы при отжиге ранее наблюдался нами для стали 12X18H10T (в МТО состоянии), облученной в реакторе БН-350 [9]. При температурах свыше 600°C начинает уменьшаться микротвердость стали (рис. 7б).

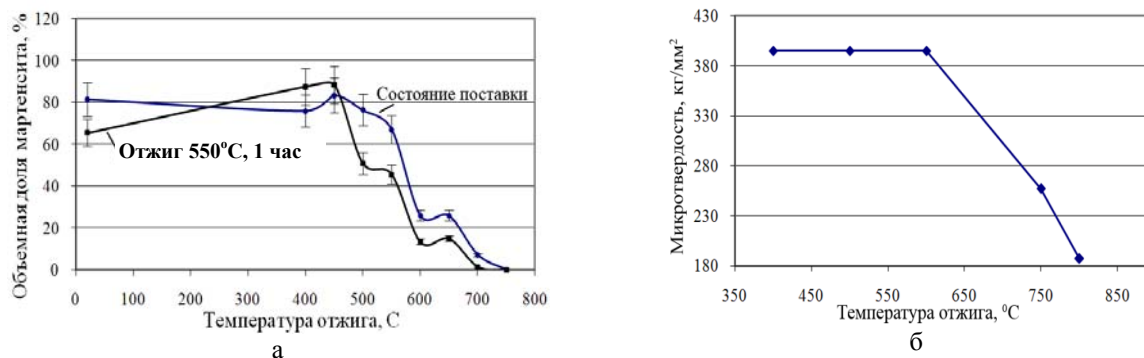


Рис. 7 — Зависимость объемного содержания мартенситной  $\alpha'$ -фазы (а) и микротвердости (б) необлученной наноструктурной стали 08X18H10T от температуры отжига

Металлографические исследования показали, что в результате высокотемпературного отжига при 800°C в структуре стали обозначились карбонитриды титана (размером 5-10мкм), а по границам (скорее всего бывших аустенитных зерен) произошло выделение дисперсных карбидов хрома.

#### Коррозионная стойкость облученной стали 08X18H10T в наноструктурном и штатном состояниях

Показателем коррозионной стойкости стали в работе служило отношение потерь веса образца за время его нахождения в агрессивном растворе к площади поверхности, а также скорость коррозии, которая определялась как отношение удельной величины изменения массы образцов к времени коррозии. На рис.8 приведены сравнительные результаты по изменению потерь массы наноструктурных стальных образцов и образцов со штатным размером зерна в зависимости от времени выдержки в агрессивном растворе (5%FeCl<sub>3</sub>). Видно, что потери массы образцов со штатным размером зерна (кривая 1, рис. 8а) значительно меньше, чем у наноструктурных образцов (кривая 2, рис. 8а).

На рис. 8б приведены данные по изменению скорости коррозии. Видно, что показатели скорости коррозии изменяются по кривой, близкой к экспоненциальной зависимости. При этом скорость коррозии наноструктурного образца после отжига максимальна и в 8 раз выше скорости коррозии образца со штатным размером зерна. Этот факт находит достаточно аргументированное объяснение с позиций влияния границ зерен, как зон с повышенной дефектностью, на коррозионную стойкость материала.

Результаты исследования влияния нейтронного облучения на коррозионную стойкость наноструктурной стали приведены на рис.9. Обращает на себя внимание то, что наименьшие потери массы установлены у наноструктурных образцов после нейтронного облучения флюенсом  $5 \times 10^{19}$  н/м<sup>2</sup> (рис.9 кривая 2), в то время, как необлученные наноструктурные образцы оказались почти в 2 раза менее устойчивыми к коррозии (кривая 1).

После облучения потоком нейтронов с флюенсом  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> наноструктурные образцы резко снизили устойчивость, скорость коррозии этих образцов возросла более, чем в 10 раз по сравнению с образцами, получившими меньший флюенс. Термическая обработка наноструктурного материала перед облучением снизила его коррозионную устойчивость более, чем в 14 раз (рис. 9а, кривые 2 и 4).



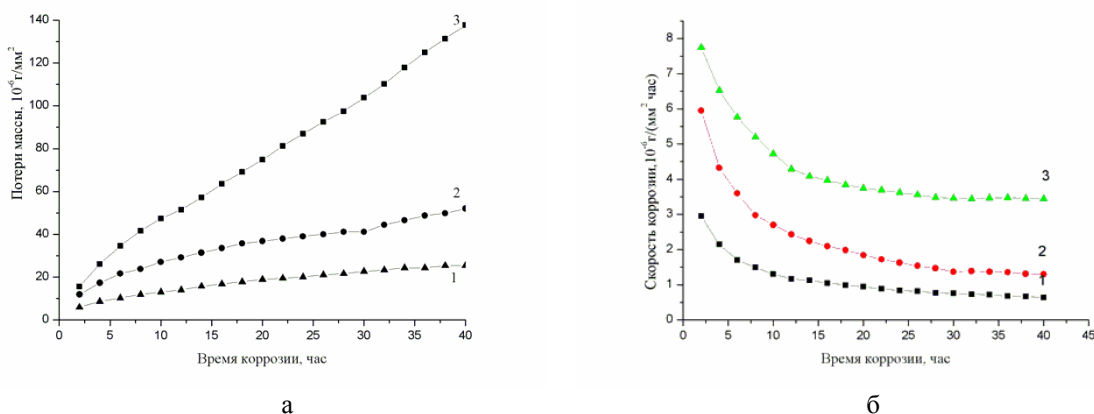


Рис.8 – Зависимость величины потери массы ( а) и скорости коррозии (б) образцов стали 12X18Н10Т со штатным размером зерна (40-50 мкм) (1), исходных образцов наноструктурной стали 08X18Н10Т (2), а также наноструктурной стали, отожженной при 550<sup>0</sup>С(1час) (3)

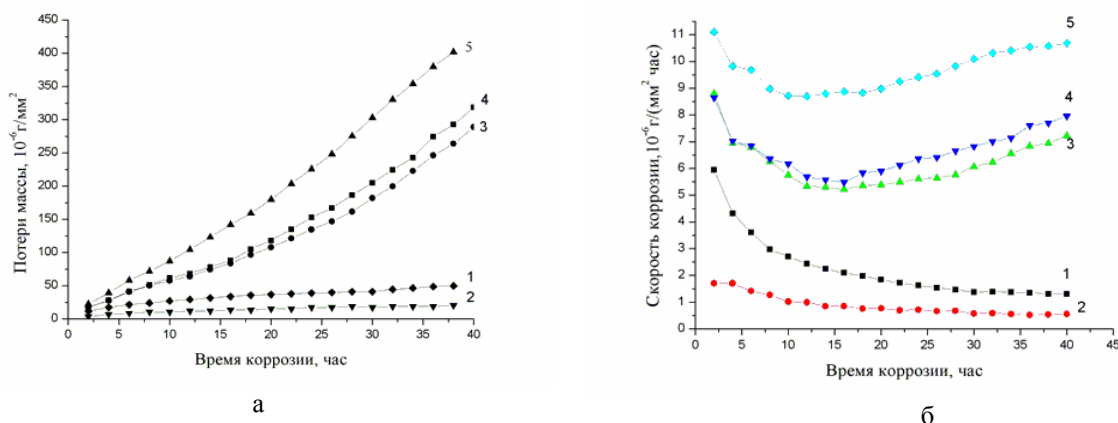


Рис. 9– Зависимость потери массы образцов (а) и скорости коррозии (б) наноструктурной стали 08X18Н10Т в растворе FeCl<sub>3</sub>. Состояние стали : 1) без облучения; 2) облучение нейтронами до флюенса  $5 \times 10^{19} \text{ н/см}^2$ ; 3) облучение до флюенса  $2 \times 10^{20} \text{ н/см}^2$ ; 4) отжиг при 550<sup>0</sup>С и облучение ( $5 \times 10^{19} \text{ н/см}^2$ ); 5) отжиг при 550<sup>0</sup> С и облучение ( $2 \times 10^{20} \text{ н/см}^2$ ).

На рис.9б приведены данные по скорости коррозии облученных наноструктурных образцов. Видно, что наименьшая скорость коррозии присуща наноструктурному образцу, который получил минимальный флюенс облучения  $5 \times 10^{19} \text{ н/см}^2$  (рис.9б, кривая 2). При этом значения скорости коррозии во всем исследованном временном интервале изменялись незначительно. Повышение нейтронного флюенса до значения  $2 \times 10^{20} \text{ н/см}^2$  резко понизило коррозионную устойчивость наноструктурной стали (рис. 9б, кривая 3). Аналогичный ход кривых скорости коррозии наблюдался для облученного материала, прошедшего предварительную термическую обработку. Оказалось, что скорость коррозии для наноструктурного материала после отжига самая высокая (кривые 4 и 5).

На рис. 10 приведены фотографии образцов до и после коррозии. Видно, что после отжига образцы прокорродировали сильнее. Облучение и термическая обработка усилили склонность стали к коррозии. При этом во всех случаях процесс коррозии начинался и протекал наиболее интенсивно на краях образцов. Отметим, что согласно замерам микротвердости, исследованные образцы являются неоднородными – величина микротвердости в центре существенно ниже, чем на периферии. Возможно, материал центра имеет иные коррозионные свойства.



а – необлученный; б – отожженный при 550<sup>0</sup>С и облученный до флюенса  $5 \times 10^{19} \text{ н/см}^2$ ; в – отожженный при 550<sup>0</sup>С и облученный до флюенса  $2 \cdot 10^{20} \text{ н/см}^2$ .

Рис. 10 – Внешний вид наноструктурных образцов стали 08X18Н10Т после 40 часов коррозии в 5%-м растворе FeCl<sub>3</sub>

Таким образом, проведенные исследования позволили установить, что облучение наноструктурного материала неоднозначно влияет на его коррозионную стойкость в хлорсодержащей среде. Облучение нейтронами до флюенса  $5 \times 10^{19}$  н/см<sup>2</sup> способствует некоторому повышению коррозионной стойкости нержавеющей стали, в то время, как после облучения нейтронами до флюенса до  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> наноструктурная сталь снижает сопротивление к питтинговой коррозии.

Термическая обработка наноструктурной стали 08X18H10T (550°C, 1 час) приводит к резкому снижению сопротивления материала коррозии. Для установления причин изменения коррозионной стойкости стали требуется проведение дополнительных исследований, например, с использованием метода электрохимических потенциалов.

#### **Заключение**

Исследовано влияние нейтронного облучения на изменение структуры и свойств наноструктурной стали 08X18H10T. Показано, что вплоть до флюенса  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup> (~0.05 сна) прочность материала изменяется незначительно, в структуре практически отсутствуют дефекты радиационного происхождения. В то же время существенно выросла склонность материала к коррозии в хлорсодержащей среде – в 8-14 раз при флюенсе нейтронов  $2 \times 10^{20}$  н/см<sup>2</sup>.

На основании полученных новых результатов по механическим и магнитным свойствам, а также коррозионной повреждаемости наноструктурной необлученной и облученной нейтронами стали 08X18H10T сделан вывод о нецелесообразности ее использования в качестве изделий для атомных реакторов непосредственно после получения без дополнительных технологических операций, для разработки которых необходимы специальные исследования.

#### **Литература**

1. Валиев Р.З., Александров И.В. Наноструктурные материалы, полученные интенсивной пластической деформацией - М., Логос, 2000, 272 с.
2. Максимкин О.П. Некоторые проблемы радиационного упрочнения и охрупчивания металлических материалов //Материалы международной конференции «Ядерная и радиационная физика», Алматы, 8-11 октября 1997 г., стр. 133-134.
3. Добаткин, С. В. Влияние исходного состояния низкоуглеродистых сталей на формирование наноразмерной структуры при пластической деформации кручением с большими степенями и давлением// Металлы. - 2006. - N 5. - С. 95-104.
4. Максимкин О.П., Гусев М.Н., Матесов Д.С., Чакров П.В. Shear-Punch – новый прибор и метод определения механических свойств высокоактивных материалов. //Вестник НЯЦ.- 2001.- Вып. 4.- С. 43-46.
5. Toloczko M.B., Yokokura Y., Abe K., Hamilton M.L., Garner F.A. and Kurtz R. The effect of specimen Thickness and Grainsize on Mechanical Properties obtained from the Shear-Punch Test. //Small Specimen Test Techniques, ASTM Stock Number STP 1418.-2002.- P.371-379.
6. Максимкин О.П., Гусев М.Н., Осипов И.С. Параметры образования мартенситной  $\alpha'$ -фазы при деформации нержавеющей сталей, облученных в реакторах ВВР-К и БН-350 // Вестник НЯЦ. – 2007.- Вып.3.- С. 12-17.
7. Цай К.В. Анализ микромеханизмов локализации деформации в облученной нейтронами стали 12X18H10T // Известия НАН РК. Сер. физ.-мат.-2010.-№2.-С.18-26.
8. Цай К.В., Максимкин О.П., Гусев М.Н., Чакров П.В. и др. Влияние пострadiационных отжигов на микроструктуру и механические свойства стали 12X18H9T, облученной в реакторе ВВР-К до 5 сна // Сб. тезисов 5-й международной конференции: Ядерная и радиационная физика.- Алматы, 2006. - Т.2. - С. 164-174.
9. Максимкин О.П., Рахашев Б.К. Обратное мартенситное  $\alpha \rightarrow \gamma$  превращение в стали 12X18H10T, облученной до 56 сна в реакторе БН-350 и деформированной при 293К // Вестник НЯЦ. - 2009.- Вып.3(39).-С. 161-172.

УДК 621.039.6

### **РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕРМИЧЕСКИХ ИСПЫТАНИЙ МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ ИТЭР**

Ударцев С.В., Кулжанов Д.Ш., Зуев В.А., Дерявко И.И., Зайцев Д.Н.  
*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

#### **Введение**

Первая стенка (ПС) реактора ИТЭР в виде трехслойной конструкции из бериллия, бронзы и стали предъявляет повышенные требования к свойствам соединений, обеспечивающих механический и тепловой контакт между слоями [1]. При анализе перспектив использования таких конструкций в реакторе ИТЭР вполне определенный интерес представляет экспериментальное установление характеристик работоспособности макетов первой стенки ИТЭР в условиях термических испытаний, близких к натурным.

Объектом испытаний являлись три макета ПС, изготовленных в Усть-Каменогорском АО «УМЗ» по технологии горячей штамповки [2]. В этих макетах защитный слой толщиной 10 мм был изготовлен из бериллия ТГП-56, теплопроводящий слой толщиной 22 мм – из бериллиевой бронзы С17510, теплоотводящий слой толщиной 49 мм – из нержавеющей стали 12X18H10T.

Термические испытания макетов ПС проводились в специально созданной экспериментальной установке ВПЧ-100 (рис. 1), обеспечивавшей как рабочие, так и аварийные режимы нагрева и охлаждения объекта испытаний. Нагрев

макета для реализации требуемых тепловых потоков на его бериллиевый слой осуществлялся с использованием плоского индуктора высокочастотного генератора мощностью 100 кВА.



Рис. 1. Внешний вид экспериментальной установки ВПЧ-100

Установка ВПЧ-100 обеспечивала расход воды через макет до 0,150 кг/с с начальной температурой до 95 °С. Основные параметры установки: тепловой поток на поверхность макета – 0,25-1,5 МВт/м<sup>2</sup>; максимальные возможные температуры в бериллии – до 700 °С, в бронзе – до 400 °С, в стали – до 160 °С; максимальное разрежение в полости рабочей камеры – около 1 торра.

Целью испытаний макетов ПС являлось изучение распределения температуры в слоях макета в зависимости от теплового потока  $Q_S$  и расхода теплоносителя  $G$ , а также термоциклические испытания макетов с различной динамикой.

#### ***Испытания первого макета ПС***

При определении характера распределения температуры в слоях первого макета ПС в зависимости от потока  $Q_S$  (при постоянном расходе  $G$ ) поверхность бериллиевого слоя сначала нагревалась тепловым потоком одной величины, а затем (после достижения теплового равновесия) – потоком большей величины. Всего было выполнено 53 эксперимента при различных температурах макета и различных выдержках при выбранной температуре.

В результате было определено, что при наличии надежного контакта между слоями макета реализация на бериллиевую поверхность теплового потока величиной 0,22 МВт/м<sup>2</sup> повышает температуру в слое бериллия до 350 °С, в слое бронзы до 300 °С и в слое стали до 250 °С. При нагреве бериллиевого слоя потоком  $Q_S$  порядка 0,6 МВт/м<sup>2</sup> повышения температур в бериллиевом, бронзовом и стальном слоях не превышали соответственно 750, 570 и 470 °С.

Во время проведения последних экспериментов с первым макетом ПС температура его бериллиевого слоя была поднята до 830 °С, что значительно превышало ее предельное значение (700 °С) для бериллия в условиях реактора ИТЭР. Эксперименты привели к разрушению макета по всей плоскости соединения бериллиевого и бронзового слоев.

В связи с разрушением макета эксперименты по определению распределения температуры в слоях макета от расхода теплоносителя (при постоянном тепловом потоке), а также термоциклические испытания не проводились.

#### ***Испытания второго макета ПС***

На первом этапе испытаний второго макета ПС было проведено 13 экспериментов по определению характера распределения температуры в его слоях в зависимости от теплового потока в диапазоне от 0,07 до 0,66 МВт/м<sup>2</sup> (расход теплоносителя оставался на всех режимах испытаний примерно постоянным и равным ~0,03 кг/с). В результате было установлено, что при потоке 0,66 МВт/м<sup>2</sup> температура в слое бериллия достигает 740 °С, в слое бронзы – 620 °С, в слое стали – 480 °С.

В соответствии с программой ИТЭР одной из задач испытаний квалификационных макетов является проверка надежности соединения бериллий–бронза при циклическом воздействии тепловых потоков с параметрами: количество циклов – 12000, тепловой поток – 0,85 МВт/м<sup>2</sup>, длительности нагрева и охлаждения – по 48 секунд [3]. При проведении таких испытаний в установке ВПЧ-100 начальная температура всех слоев второго макета составляла примерно 100 °С. Сначала выполнялся цикл нагрева макета в течение 48 с потоком, равным 0,85 МВт/м<sup>2</sup>, затем после отключения нагрева проводилось его охлаждение также в течение 48 с. Было выполнено 3 эксперимента по три термоцикла в каждом, при этом в каждой последующем эксперименте расход теплоносителя увеличивался.

Все три эксперимента показали одно и то же (рис. 2): после 48-секундного нагрева в первом цикле максимальная температура бериллиевого слоя (см. термопары ТМ3-ТМ6, ТМ18, ТМ20, ТМ22) достигла примерно 450 °С, во втором – 650 °С, в третьем – 800 °С. За время охлаждения в течение 48 с после каждого цикла нагрева температура слоев макета до исходного значения не снижалась. Можно поэтому предположить, что после нескольких



следующих циклов могла бы быть достигнута температура плавления бериллия, либо температура плавления эвтектики на границе бериллиевого и бронзового слоев.

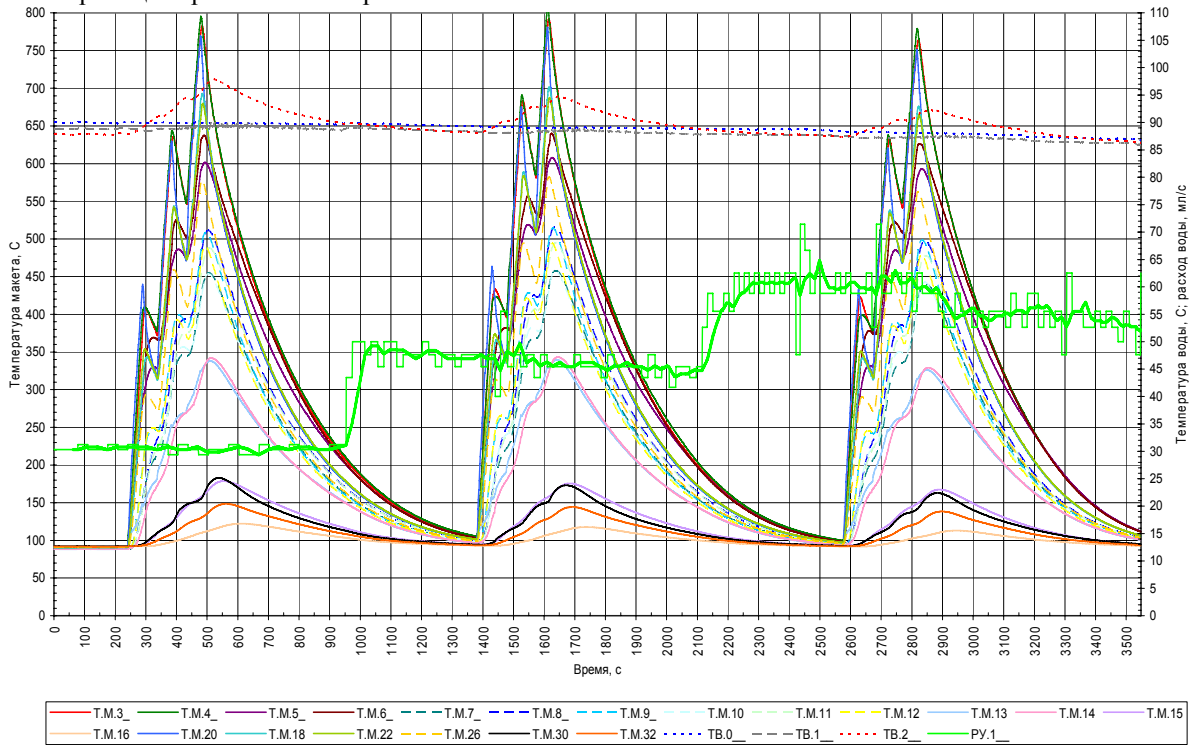


Рис. 2. Распределение температуры во втором макете ПС при термоциклических испытаниях

В дальнейшем было проведено 2 эксперимента по определению характера распределения температуры в слоях макета в зависимости от расхода  $G$  при неизменном потоке  $Q_s$ . Изменение расхода теплоносителя выполнялось после установления теплового равновесия в макете при постоянном потоке  $Q_s$ , равном 0,05 или 0,15 МВт/м<sup>2</sup>.

Расход теплоносителя при тепловом потоке 0,05 МВт/м<sup>2</sup> увеличивался дискретно с 0,025 до 0,055 кг/с с выдержкой при каждом значении в течение примерно 4 минут. Однако температурные изменения в слоях макета не происходили. При потоке 0,15 МВт/м<sup>2</sup> значение расхода было постепенно уменьшено до исходного значения. При этом температурные изменения в слоях макета снова не происходили. Из этого было сделано заключение, что данная конструкция макета не обладает достаточной поверхностью взаимодействия с теплоносителем, чтобы обеспечить необходимый отвод тепла от макета.

Было, кроме того, обращено внимание на то, что столь малые тепловые потоки на бериллиевый слой второго макета (0,05 и 0,15 МВт/м<sup>2</sup>) вызвали более высокий его нагрев по сравнению с таковым в ходе испытаний первого макета. Обратил на себя внимание также и большой перепад температуры между слоями бериллия и бронзы. Все это указало на то, что при выполнении предыдущих экспериментов произошла потеря тепломеханического контакта между указанными слоями. Повторные эксперименты по определению характера распределения температуры в слоях макета от теплового потока подтвердили данное предположение.

Эксперименты со вторым макетом, как и в случае с первым макетом, привели к его разрушению по месту соединения бериллиевого слоя с бронзовым. При обследовании этого макета выяснилось, что, несмотря на разрушение, он сохранил компактный вид (не разделился на два фрагмента по плоскости соединения бериллиевого слоя с бронзовым). Компактность макета была обеспечена тем, что соединение слоев бериллия и бронзы у этого макета, как видно на рис. 3, было технологически выполнено с замковыми зацеплениями возле боковых торцов. (Подобные замковые зацепления между бериллиевым и бронзовым слоями имелись и у третьего макета ПС.)

**Испытания третьего макета ПС**

При определении характера распределения температуры в слоях третьего макета ПС в зависимости от теплового потока при постоянном расходе теплоносителя было выполнено 2 эксперимента. В первом эксперименте поток  $Q_s$  составлял 0,07 МВт/м<sup>2</sup> при расходе  $G$ , равном ~0,027 кг/с. Через 900 секунд температура бериллиевого слоя достигла 560 °С, а температура бронзового слоя – только 210 °С, при этом плавного перехода температуры между слоями бериллия и бронзы не обнаружено. Температура стального слоя составила около 150 °С, при этом наблюдается плавный переход температуры между слоями бронзы и стали. Так как при заданном тепловом потоке температура бериллиевого слоя и перепад температуры между бериллиевым и бронзовым слоями продолжали расти, то нагрев испытываемого макета был прекращен. После чего был проведен второй эксперимент с условиями, близкими к условиям первого эксперимента (при тепловом потоке 0,08 МВт/м<sup>2</sup> и расходе теплоносителя 0,028 кг/с).

В результате в обоих экспериментах было получено следующее: при невысоком тепловом потоке в третьем макете возникает значительный перепад температуры между слоями бериллия и бронзы, что указывает на отсутствие у этих слоев надлежащего теплового контакта.

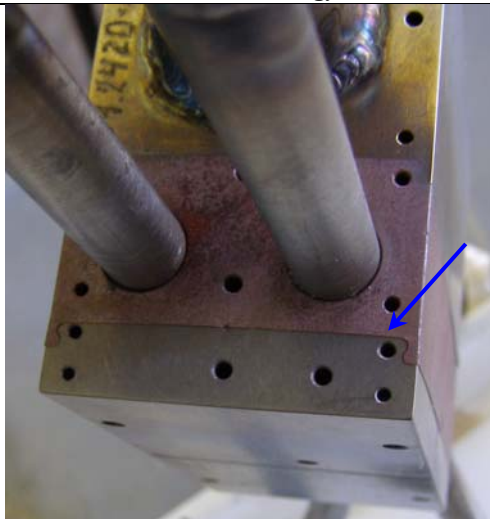


Рис. 3. Состояние второго макета ПС после термических испытаний

Далее был проведен 1 эксперимент по циклическому нагреву макета с расходом теплоносителя 0,025 кг/с. Макет в течение 48 с нагревался тепловым потоком  $0,85 \text{ МВт/м}^2$ , после чего он был охлажден до исходной температуры, равной  $\sim 100 \text{ }^\circ\text{C}$ . Анализ распределения температуры в слоях макета показал, что максимальная температура бериллиевого слоя достигла  $980 \text{ }^\circ\text{C}$ , температура же этого слоя на границе с бронзовым слоем находилась (по показаниям различных термопар) в диапазоне  $670\text{-}790 \text{ }^\circ\text{C}$ . При этом максимальная температура бронзового слоя составила только  $\sim 200 \text{ }^\circ\text{C}$ .

Таким образом, выполненные три эксперимента показали, что данный макет уже в исходном состоянии не был способен обеспечить эффективную передачу тепловой энергии от бериллиевого слоя к бронзовому по причине отсутствия надлежащего теплового контакта на границе этих слоев. В связи с этим дальнейшие эксперименты с третьим макетом ПС были прекращены.

#### **Заключение**

Термическими испытаниями установлено, что при надежном тепломеханическом контакте между слоями макета ПС тепловой поток порядка  $0,6 \text{ МВт/м}^2$  вызывает нагрев бериллиевого слоя выше  $700 \text{ }^\circ\text{C}$ . Во время термоциклических испытаний макета температура его слоев после прекращения теплового воздействия не возвращается к исходным значениям. Изменение расхода теплоносителя через каналы макета не вызывает существенного изменения температуры в его слоях при неизменном тепловом потоке. По мере проведения испытаний происходит нарушение тепломеханического контакта на границе бериллия с бронзой. Наличие замковых зацеплений не препятствует разрушению тепломеханического контакта бериллиевого и бронзового слоев, а лишь удерживает слои вместе. Технология, по которой изготовлены испытанные макеты ПС, не является совершенной и требует доработки.

#### **Литература**

1. Чернов В.М., Леонтьева-Чернова М.В., Потапенко М.М. Современные конструкционные материалы для термоядерного реактора. – Тезисы междунар. семин. «Экспериментальные возможности токамака КТМ и программа исследований, Астана, 10-12 окт. 2005». – Курчатов, НЯЦ РК, 2005, с. 36-37.
2. Разработка технологии сварки бериллий-бронза и получение сварных образцов. – Технический отчет, АО «УМЗ», Усть-Каменогорск, 1997, 47 с.
3. Ударцев С.В., Кулжанов Д.Ш., Дерякко И.И. Экспериментальное исследование поведения первой стенки реактора ИТЭР в штатных и аварийных режимах ее нагрева. – Вестник НЯЦ РК, 2008, вып. 4, с. 50-56.

## **РЕКОМБИНАЦИОННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ $\text{Gd}_3\text{Sc}_2\text{Al}_3\text{O}_{12}$ АКТИВИРОВАННЫХ ИОНАМИ НЕОДИМА И ХРОМА**

Курбанов А.М., Нуритдинов И., Гаппаров А.  
ИЯФ АН РУз

Кристаллы со структурой граната хорошо известны как активные среды для квантовых оптических генераторов [1]. Активированные кристаллы также широко применяются в качестве твердотельных люминесцентных дозиметров [2], сцинтилляторов [3] и люминесцентных детекторов ионизирующих излучений [2], эффективных люминофоров для катодных трубок [3] и светоизлучающих диодов [2], работа которых основывается на рекомбинационные процессы, в частности рекомбинации на активаторных центрах.

Несмотря на то, что имеются большое количество работ, посвященных исследованию рекомбинационной люминесценции кристаллов со структурой граната [1-8], нет полной ясности о механизмах рекомбинационной активаторной люминесценции в этих материалах, т. к. мнения различных авторов сильно расходятся. Все это требует всестороннего изучения рекомбинационных процессов в этих материалах.

В данной работе были исследованы механизмы активаторной рекомбинационной люминесценции ионов  $Nd^{3+}$  и  $Cr^{3+}$  кристаллов гадолиний – скандий – алюминиевых гранатов (ГСАГ), как одного из представителя кристаллов со структурой граната.

Выбор объекта исследования связана тем, что, кристаллы ГСАГ обладают повышенной технологичностью выращивания и улучшенными теплофизическими характеристиками по сравнению с другими кристаллами со структурой граната, что, особенно важно при работе активных элементов в условиях значительного нагрева [9], а кристаллы ГСАГ -  $Nd^{3+}$  и  $Cr^{3+}$  являются лазерными материалами, сочетающие в себе благоприятных спектральных, механических и теплофизических свойств, благодаря особенностям расщипления энергетических уровней ионов  $Cr^{3+}$  в октаэдрических узлах [10]. В относительно слабом кристаллическом поле можно использовать этих кристаллов в качестве эффективных сенсibilизаторов люминесценции таких ионов, как  $Nd^{3+}$ ,  $Er^{3+}$ ,  $Tm^{3+}$ ,  $Ho^{3+}$ .

Кристаллы для исследований были выращены методами Чохральского (Ч) и направленной кристаллизации (НК). Были исследованы неактивированные, активированные и соактивированные различными концентрациями ионов  $Cr^{3+}$  и  $Nd^{3+}$  кристаллы. Составы исследованных образцов приведены на таблице.

Таблица 1 – Состав исследованных кристаллов ГСАГ

№	Кристаллы	Содержание ионов $Nd^{3+} \times 10^{20}$	Содержание ионов $Cr^{3+} \times 10^{20}$	Методы выращивания	Условия синтеза
1	ГСАГ	-	-	НК	Вак
2	ГСАГ	-	-	Ч	N
3	ГСАГ: $Nd^{3+}$	1-3	-	Ч	Вак
4	ГСАГ: $Cr^{3+}$	-	0,5-3	Ч	N
5	ГСАГ: $Nd^{3+}$ , $Cr^{3+}$	2-3	1-3	Ч	N
6	ГСАГ: $Nd^{3+}$ , $Cr^{3+}$	2	2-3	НК	Вак
	ГСАГ: $Nd^{3+}$ , $Cr^{3+}$	2	2-3	Ч	$H_2$

Образцы размерами 10x10x1мм были вырезаны из буле и отполированы до получения оптической поверхности. Спектры оптического поглощения исследуемых кристаллов снимались при 300 и 77 К в области 200-900 нм на стандартном двухлучевом спектрофотометре Specord M40. Облучение осуществлялось гамма-источником  $Co^{60}$  мощностью 350 р/с до дозы  $10^6$ Р. Возбуждение гамма-люминесценции (ГЛ) осуществлялось гамма-лучами источника  $Co^{60}$  мощностью 500 Р/с. Гамма-люминесценция (ГЛ) и спектральный состав термостимулированной люминесценции (ТЛ) в спектральной области 300-1000 нм регистрировалось на специально разработанной установке, собранной на базе монохроматора SPM-2 и фотоумножителя ФЭУ -106 при температурах 77-300 К. Температурные зависимости интенсивности люминесценции на различных полосах собственной и активаторной ГЛ исследовались в режимах нагревания в температурном интервале 77-300 К. Интегральное термовысвечивание (ТВ) и спектральный состав ТЛ в области 200-800 нм регистрировались в диапазоне температур 100-600 К при скорости нагрева 0,23 К/с.

Активаторная люминесценция в твердых телах в основном возбуждается двумя механизмами [11]: а) энергия возбуждения поглощается и возбуждает матрицу кристалла, затем поглощенная энергия передается различными способами к активаторным центрам; б) энергия ионизирующих излучений непосредственно поглощается ионами активатора и испускается в виде излучения. Для проверки возможности реализации этих механизмов в ГСАГ были исследованы температурные зависимости ГЛ и оптического поглощения активированных примесями кристаллов.

В спектре ГЛ кристаллов ГСАГ-Nd при 300 К обнаружены характерные группы линий свечения, обусловленные переходами на ионах  $Nd^{3+}$  (рис. 1, кривая 2). ГЛ кристаллов ГСАГ-Cr состоит из широкой полосы, обусловленной свечением ионов  $Cr^{3+}$  с максимумом в 740 нм (рис. 1, кривая 1). В спектре ГЛ кристалла ГСАГ - Cr, Nd обнаруживаются и группы линий, обусловленных ионами  $Nd^{3+}$ , и широкая полоса свечения ионов  $Cr^{3+}$  (рис. 1 кривая 2).

При понижении температуры от 300 до 77 К происходит уменьшение интенсивности активаторной люминесценции ионов  $Nd^{3+}$  (рис. 2). Степень уменьшения интенсивности свечения зависит от концентрации ионов Nd и Cr в матрице ГСАГ. При этом наблюдается антисимбатное к изменению интенсивности активаторной люминесценции увеличение интенсивности собственной полосы с максимумом 420 нм (рис. 2, кривые 2-4), приписываемый нами свечению АЛЭ в ГСАГ, что свидетельствует об определенной связи между изменением свечения АЛЭ и разгоранием активаторной люминесценции при повышении температуры возбуждения.

В кристаллах, где происходит автолокализация электронных возбуждений, в области стабильности автолокализованных дырок выход активаторной люминесценции должен резко падать [11,12], так как при этих температурах дырки локализируются в регулярных узлах решетки и их миграция к активатору замораживается. В интервале 77–140 К интенсивность свечения примеси  $Nd^{3+}$  в ГЛ не изменяется, а выше температуры первого пика ТВ наблюдается резкий рост. Такая зависимость выхода активаторной люминесценции в ГСАГ имеет место даже при увеличении концентрации активатора  $Nd^{3+}$  до  $10^{20}$  и выше (рис.2, кривые 3 и 4). Из полученных результатов можно предполагать, что за активаторное свечение в ГСАГ-Nd при гамма возбуждении ответственны передача энергии релаксированных экситонов. При этом в области температур выше 140 К решающим оказывается их подвижность. При своем движении они обменного взаимодействия передают последним энергию возбуждения. Совпадение

температуры разгорания люминесценции  $Nd^{3+}$  - ионов и делокализации дырок из регулярной решетки свидетельствует о том, что движение релаксированных экситонов становится возможным при «размораживании» их дырочного компонента. В предположении прыжковой диффузии релаксированных дырок при температуры выше температуры делокализации следовало ожидать инерционного разгорания активаторной радиолуминесценции. При 77 К, когда движения автолокализованных дырок заморожено, свечение активаторов не равно нулю (рис. 2, кривые 2,3). Кроме того, с ростом концентрации активатора растет и интенсивность его свечения при 77 К (рис. 2, кривые 2,3). С точки зрения неподвижности автолокализованных дырок эти факты объяснить трудно. Если допустит некоторый пробег горячих дырок до автолокализации при температуры меньше 140 К, то с увеличением содержания активатора расстояние между вероятности встречи дырок с активатором значительно увеличивается, что и должен привести к возрастанию эффективности возбуждения активаторной люминесценции с повышением концентрации  $Nd^{3+}$  при этих температурах.

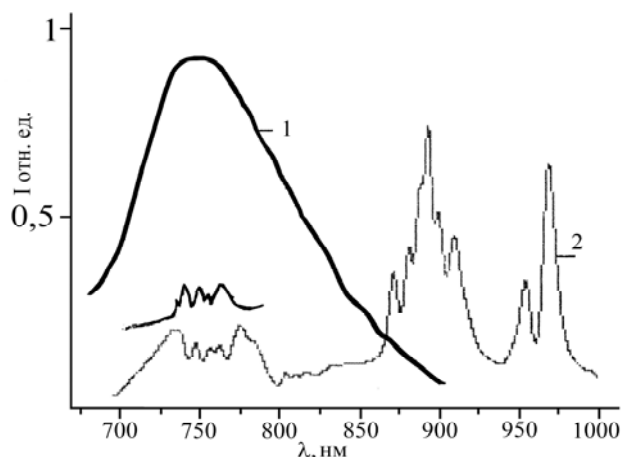


Рис. 1 – Спектры кристаллов:  
1 – ГЛ ГСАГ-Cr;  
2- ГЛ ГСАГ-Cr,Nd;  
3 – оптического поглощения ГСАГ-Nd.

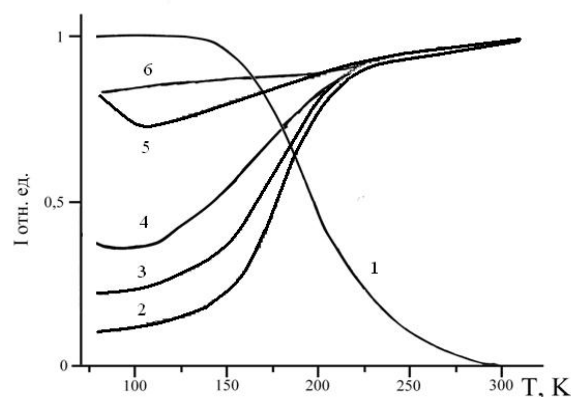


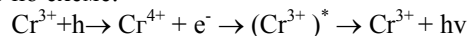
Рис. 2 – Температурная зависимость ГЛ кристаллов:  
1 – неактивированный ГСАГ;  
2 – ГСАГ-Nd,  $C_{Nd}=5.10^{19} \text{ см}^{-3}$ ; 3 - ГСАГ-Nd,  $C_{Nd}=10^{20} \text{ см}^{-3}$ ;  
4 - ГСАГ-Cr,  $C_{Cr}=10^{18} \text{ см}^{-3}$ ; 5 – ГСАГ-Cr,  $C_{Cr}=2.10^{20} \text{ см}^{-3}$ ;  
6- ГСАГ-Nd,Cr.  $C_{Nd}=2.10^{20} \text{ см}^{-3}$ ;  $C_{Cr}=2.10^{20} \text{ см}^{-3}$ .

Процессы передачи энергии при большой концентрации ионов  $Nd^{3+}$  резко отличается от возбуждения активаторных ионов группы железа ( $Cr^{3+}$ ). По изучению температурной зависимости выхода активаторной гамма-люминесценции ГСАГ-Cr было обнаружено, что при достаточно больших концентрациях (от  $5.10^{19}$  до  $3.10^{20} \text{ см}^{-3}$ ) активатора выход активаторной гамма люминесценции до температуры 140 К практически не изменяется в районе температур делокализации дырок (рис.2, кривая 5). Исследование концентрационной зависимости этого эффекта показало, что при малых концентрациях активатора понижение температуры ниже температуры делокализации дырок приводит к резкому уменьшению выхода активаторной радиолуминесценции (рис. 2, кривая 4). В то же время при большой концентрации хрома в спектрах поглощения отсутствует характерная для автолокализованных дырок полоса поглощения с максимумом 650 нм (рис.3) из чего можно предполагать, что с повышением концентрации активатора вероятность захвата горячей дырки активатором ( $Cr^{3+}$ ) растет.

Образующаяся при гамма-облучении дырка успевает пройти до полной релаксации некоторое расстояние и в случае встречи с примесным центром может захватиться им, переводя их в более высокое зарядовое состояние, аналогично происходящему в ЩГК [11]. Прямым подтверждением этого механизма служат результаты исследования кристаллов, активированных хромом с концентрацией  $3.10^{19}$ - $2.10^{20} \text{ см}^{-3}$ . При увеличении концентрации, начиная с концентрации хрома  $3.10^{19} \text{ см}^{-3}$ , в спектре оптического поглощения не наводится полоса низкотемпературного поглощения с максимумом 560 нм, а наблюдается только полоса с максимумом при 500 нм и одновременно исчезает полоса люминесценция с максимумом 420 нм, обусловленная автолокализованными экситонами. Ранее в [8] было показано, что полоса поглощения при 500 нм имеет дырочную природу и принадлежит иону  $Cr^{4+}$ , образуемому при захвате дырок ионом  $Cr^{3+}$ . Полосы поглощения при 300 и 350 нм, согласно [8], обусловлены  $F^+$ -центрами.

Очевидно, присутствующие в кристаллах ионы хрома являются каналом стока для дырок, генерируемых гамма-излучением, что естественно сокращает количества дырочных центров, автолокализованных в регулярной решетке.

При захвате горячей дырки образуется  $Cr^{4+}$ -центр. Рекомбинация электрона на этом центре происходит излучательно по схеме:



При малых концентрациях вероятность захвата активатором горячих дырок меньше, поэтому дырки автолокализируются. После их делокализации при температурах  $T_d > 140 \text{ К}$ , они захватываются ионами хрома, что приводит к резкому возрастанию интенсивности радиолуминесценции  $Cr^{3+}$ .

## Литература

1. Каминский А.А.. Лазерные кристаллы. / М: «Наука» - 1975 –с.
2. Сокульская Н.Н.. Синтез и исследование гранатов РЗЭ и алюминия для светоизлучающих диодов.//Дис... канд. хим. Ставрополь -2004 – 140 с.
3. Аверкин В.В., Валбис Я.Ф., Григорян А.Х. и др. Люминесценция кристаллов на основе сложных окислов элементов третьей группы. / В кн.: «Люминесцентные приемники и преобразователи ионизирующего излучения». Новосибирск, «Наука», 1985, С.102-106.
4. Vakhidov Sh.A., Ibragimova E.M., Nuritdinov I., Rakov A.F., Ikramov G.I.. Self-Trapped Particles in Complex Oxide Crystals. // Phys.Stat. Sol. (b) – 1981, V.106 – No1 – pp 31-35.
5. Рыскин Н.Н. Рекомбинационная люминесценция монокристаллов галлиевых и алюминиевых гранатов: //Автореф. дис. к.ф.-м.н. –М., 1991. –21с.
6. Абрамов В.Н., Кузнецов А.И., Фундаментальное поглощение Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и YAlO<sub>3</sub>.// ФТТ. -1978. –Т.20, -С. 689-694.
7. Ashurov M.Kh., Rakov A.F., Amonov M. and Kurbanov A.M.. Radiation Stimulated Colour Centers and Recombination Luminescence in Garnet Crystals. //Узбекский физический журнал. -1998. № 2 , стр. 36-41.
8. Курбанов А.М.. Радиационные центры окраски и рекомбинационная радиолюминесценция в кристаллах со структурой граната.// Автореф. На соискание ученых степен канд. Физ.мат. наук Ташкент 1993, 21 с.
9. Денисов А.Л., Жариков Е.В., Загуменный А.И. и др. Кристаллы ГСАГ и ИСАГ с Cr<sup>3+</sup> и Yb<sup>3+</sup>,Er<sup>3+</sup> как активные среды твердотельных лазеров 1,5 мкм диапазоне. /Препринт Ин-т общей физики АН СССР: 26 - М.: ИОФ АН СССР – 1987 - 12 с.
10. Прохоров А.М.. Новое поколение твердотельных лазеров. //УФН – 1986 – т.148 - №1 – С.7-33
11. Алукер Э.Д., Лусис Д.Ю., Чернов С.А.. Электронные возбуждения и радиолюминесценция щелочно-галлоидных кристаллов. / Рига: «Зинатне» - 1979, 252 с.
12. Лущик Ч. Б., Лущик А.Ч. Распад электронных возбуждений с образованием дефектов в твердых телах. / М: «Наука» - 1989, 264 с.

## РОЛЬ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ В УСТОЙЧИВОМ РАЗВИТИИ РОССИИ

В.А. Ветров

Институт глобального климата и экологии, Росгидромет и РАН, Москва, Россия

## Введение

Концепция устойчивого развития основана на двух основных понятиях: «*потребности*» и «*ограничения*», налагаемые состоянием технологии и социальной организации на способность ресурсов и окружающей среды отвечать настоящим и будущим требованиям [1].

В современной глобальной экономике налицо полное несоответствие ситуации основным принципам устойчивого развития - как логическое следствие традиционной концепции экспоненциального роста. Экономика человечества с каждым годом расходует на 3,5% больше энергии, при этом признается, что энергия играет центральную роль в достижении целей устойчивого развития.

Большинство высокоразвитых стран в качестве одного из основных условий устойчивого экономического роста и повышения качества жизни принимают стабильное и гарантированное обеспечение экономики энергоресурсами. Ключевая проблема устойчивости заключена в скорости, с которой убывают (истощаются) невозобновляемые ресурсы и в скорости восстановления (или замены) возобновляемых ресурсов. По мнению авторов «Пределов роста» [2], в этой области царит полная неразбериха – «даже насчет того, будут ли когда-либо... невозобновляемые ресурсы полностью израсходованы». «*Ресурс* – это понятие, описывающее суммарное количество определенного вещества в земной коре; *запас* – понятие, описывающее разведанное или предполагаемое количество вещества, которое можно извлечь или использовать по приемлемой цене... Ресурс неизбежно уменьшается, в то время как запасы некоторое время могут увеличиваться... Сложилась порочная практика делать заявления насчет запасов, основываясь на данных по ресурсам». [2].

Ядерная энергетика (ЯЭ), в отличие от энергетике на органическом топливе, не вызывает нарушений биогеохимических циклов кислорода, углекислого газа, серы, азота. Прогнозируемые энергетические потребности мира в XXI веке не ставят развитию ЯЭ верхнего предела, её масштабы будут определяться технологическими возможностями и требованиями устойчивого развития, которые необходимо анализировать уже сегодня [3]. Следует учитывать, что имеющиеся российские и мировые запасы природного урана не могут обеспечить устойчивого и долговременного развития ЯЭ на тепловых нейтронах. Установленные мировые урановые запасы (со стоимостью извлечения менее 130 долл./кг U) оцениваются до 5,5 млн. тонн, годовой объем мирового производства урана в 2005-2007 годах оставался на уровне, примерно равном 40 000 тонн, при этом среднегодовой спрос составлял приблизительно 67 000 тонн. Из этих данных следует, что обеспеченность мировой ЯЭ при существующих темпах развития ЯЭ на тепловых нейтронах составляет менее 100 лет [4].

На этом мировом фоне представляет интерес оценить роль ядерной энергетики в устойчивом развитии России. Этот обзор выполнен по опубликованным материалам, относящимся к состоянию и потреблению природных ресурсов, состоянию природной среды, прогнозам и вариантам развития энергетики в стране.

### **1. Состояние энергетических ресурсов России в современный период**

Состояние энергетических ресурсов России оценивается по их запасам, потреблению и степени истощения.

**Уголь и углеводородное топливо** [5-10]. Россия полностью обеспечена ресурсами углеводородного топлива: *нефть и газовый конденсат, газ, уголь, сланцы и торф*. Три первых вида топлива являются основными, составляя около 90% в современном топливно-энергетическом балансе России. Найденные запасы *нефти* составляют 6,7 млрд. тонн (4,6% мировых запасов). Прогнозные ресурсы *нефти* оцениваются в 44 млрд. т, *газа* – 48 трлн. куб. м, *угля* – более 200 млрд. т, что составляет, соответственно, 11-13% (*нефть*), 42% (*газ*) и 12% (*уголь*) мировых прогнозных ресурсов. Потребление *газа* в России имеет преимущественную энергетическую направленность. Современное состояние ресурсной базы углеводородного сырья характеризуется снижением разведанных запасов нефти и газа и низкими темпами их воспроизводства. Считается, что прогнозные запасы топливно-энергетических ресурсов (ТЭР) в РФ достаточны для необходимого развития топливно-энергетического комплекса (ТЭК), **однако время дешевых энергоресурсов в стране закончилось**. С учетом текущего и прогнозируемого уровня потребления *нефти, газа и угля*, обеспеченность их добычи оценивается, соответственно, в 70, 80 и порядка 1000 лет.

**Ядерное топливо** [5, 11, 12]. Ежегодная потребность современной (2007 год) ядерной энергетики России оценивается в 2800-3300 т/год *природного урана* при получении энергии в реакторах на тепловых нейтронах, а с учетом экспортных поставок ядерного топлива – около 6000–7700 т. Суммарные запасы *природного урана* в России при средней стоимости добычи оцениваются на уровне 240 тыс. т. В сумме по всем категориям, к началу нынешнего столетия природные ресурсы *урана* в России оценивались в размере около 1 млн. т, т.е. около 10% потенциальных мировых ресурсов всех категорий доступности. Независимые эксперты делают вывод о недостатке запасов *природного урана* в России для обеспечения заявленных темпов развития атомной энергетики на «тепловых» реакторах: с 9000 т/год в 2004 году до 29 000 т/год к 2050 году; эти потребности могут быть покрыты за счет собственных ресурсов примерно на 60%. Общий вывод: **имеющиеся российские и мировые запасы природного урана не могут обеспечить устойчивого и долговременного развития ядерной энергетики на тепловых нейтронах**. В будущем утилизацию *оружейного плутония* следует рассматривать в качестве первого этапа создания технологии замкнутого ядерного топливного цикла с реакторами на быстрых нейтронах.

**Гидроресурсы** [13]. На территорию России приходится около 8,3% мировых потенциальных *гидроэнергетических ресурсов* рек планеты, т.е. 330 млн. кВт и 2896 млрд. кВт·ч/год. Технический гидроэнергетический потенциал рек России оценивается величиной 1670 млрд. кВт·ч, экономический гидроэнергетический потенциал – 850 млрд. кВт·ч – 29% общего гидроэнергетического потенциала стока рек России, 8,7% мировых экономических гидроэнергетических ресурсов. Степень освоения экономического потенциала в России — около 20%, доля гидроэнергетики в производстве электроэнергии – 17%. Эти показатели использования *гидроэнергетических ресурсов* в России близки к среднемировым: степень освоения мировых *гидроресурсов* немногим больше 20%, доля гидроэнергетики в мировом производстве электроэнергии – около 15%.

**Возобновляемые источники энергии (ВИЭ)**. Технический потенциал возобновляемых источников энергии в России составляет порядка 4,6 млрд. тонн условного топлива (тут) в год, то есть в пять раз превышает объем потребления всех ТЭР страны, а экономический потенциал определен в 270 млн. тут в год, т.е. порядка 25% от годового внутреннего потребления энергоресурсов в стране [5]. Полное количество энергии, производимой за счет ВИЭ в общем энергетическом балансе страны пренебрежимо мало – порядка 0,1-0,6%. По уровню использования наиболее доступного вида ВИЭ – энергии ветра, Россия находится на одном из последних мест в Европе, отставая от лидеров (Германия, Испания) по использованию ветроэлектростанций в тысячу раз [14]. Для оживления «экологической» энергетики нужны меры экономического стимулирования, а также ограничения на выброс вредных веществ в атмосферу на вводимые вновь электростанции.

### **2. Энергоэффективность экономики и экологическая безопасность энергетики**

**Энергоэффективность экономики**. Энергоэффективность экономики оценивается по показателям энергоемкости – затратам энергии (кВт·ч) или энергоресурсов (тонн нефтяного эквивалента, тнэ) на 1 \$ ВВП. По показателям энергоэффективности Россия выглядит безнадежно отставшей. В конце 1990-х годов энергоемкость экономики России превышала показатели для развитых стран до 10 раз. Те же показатели в 2008 году выглядели следующим образом (тнэ/1000 \$ ВВП): Россия – 0,61; США – 0,28; Германия – 0,21; Япония – 0,17. На современном этапе (2007 г.) энергоемкость экономики России в 2,3 раза превышает среднемировую показатель и в 3,1 раза – для стран ЕЭС [15, 16].

Эта катастрофическая ситуация связана прежде всего с нарастающей технологической отсталостью энергоемких отраслей промышленности и автотранспортной инфраструктуры, на которые приходится 2/3 всего потребления энергии, и крайне неэффективным коммунальным хозяйством. Другая серьезная причина отсталости – недооценка стоимости энергоресурсов, прежде всего газа, не стимулирующая энергосбережение. В 2003 г. потенциал энергосбережения в России оценивался в 360-430 млн. тут энергоресурсов, что сравнимо с годовым энергопотреблением развитых европейских государств [15].

Энергосбережение и развитие возобновляемых («альтернативных») источников энергии становятся актуальными национальными задачами. Перестройка структуры экономики и технологические модернизации должны уменьшить энергоемкость ВВП (по сравнению с 2003 г.) до 55% к 2020 году [5].

**Экологическая безопасность энергетики**. Показателем экологической безопасности экономики может служить карбоноёмкость – выброс CO<sub>2</sub> на 1 \$ ВВП – поскольку в наше время наибольшая угроза природному равновесию



связана с выбросами парниковых газов, прежде всего CO<sub>2</sub> в энергетическом секторе. По карбоноёмкости экономики Россия превышает страны с развитой промышленностью в 2-6 раз. При выборе перспективных направлений развития ТЭК учет экологических эффектов, таких как эмиссии парниковых газов (в особенности CO<sub>2</sub>), делает ядерную энергетику и ВИЭ наиболее перспективными альтернативами производства энергии [15].

### **3. Роль ядерной энергетики в обеспечении экологически безопасного энергопроизводства**

**Топливные циклы: воздействие на окружающую среду** Лежащий в основании Норм радиационной безопасности (НРБ, [17]) подход к оценке радиационного риска нами определен как «антропоцентрический» [18]. «Антропоцентрические» нормы могут служить для расчета пределов безопасного для любых живых организмов радиоактивного загрязнения компонентов природных экосистем (концепция МКРЗ, [19]). По известным оценкам, вклад предприятий атомной отрасли в суммарное облучение населения находится в пределах погрешности оценки, т.е. составляет менее 0,1%. При этом разработка нормативов предельно-допустимого радиационного воздействия на природные экосистемы лишена всякого смысла, т.к. отсутствуют контролируемые ситуации, в которых эти нормативы могут применяться.

В то же время риски, обусловленные химическим загрязнением объектов окружающей среды, во многих случаях лежат в области неприемлемых значений. На этом фоне избыточная жесткость норм радиационной безопасности представляется нерациональной и требует гармонизации на основе комплексного анализа риска [20, 21].

Тепловая энергетика относится к числу главных источников загрязнения атмосферы. В городах с крупными угольными ТЭС индивидуальные годовые риски здоровью населения находятся на уровне 10<sup>-3</sup>–10<sup>-4</sup>, в то время как риск здоровью населения, проживающего вблизи АЭС, составляет 10<sup>-5</sup>–10<sup>-7</sup> [20]. Не отмечено ни одного случая превышения действующих нормативов радиоактивного загрязнения воздуха вблизи нормально функционирующих объектов ЯЭ [22]. Аналогичная ситуация имеет место и в отношении химического и радиоактивного загрязнения природных вод.

**Сравнительная оценка экологических ущербов от ядерной энергетики и других отраслей экономики** В качестве основного критерия для оценки соответствия различных способов получения энергии условиям устойчивого развития служит показатель «экологический ущерб». Важным, если не решающим, конкурентным показателем при выборе энергетической стратегии должна быть всесторонняя оценка ущерба природным ресурсам: потребление (изъятие из природных циклов), загрязнение, деградация и т.п.

Общая площадь земли на территории России, выведенной из хозяйственного оборота в результате радиоактивного загрязнения, составляет 4000–4500 км<sup>2</sup>, т.е. порядка 0,1% от всей площади земель, находящихся на уровне экологического кризиса. При этом земли, отчужденные по причине высоких уровней радиоактивного загрязнения, практически пригодны для ведения тех отраслей сельского и лесного хозяйства, которые не связаны с производством продовольствия и деловой древесины. В регионах размещения ведущих предприятий ядерной отрасли основными причинами загрязнения и деградации окружающей среды и экологических рисков здоровью населения являются выбросы загрязняющих химических веществ, промышленные и бытовые отходы, техногенные нарушения ландшафта [23].

Проблема обращения с радиоактивными отходами (РАО) в настоящее время имеет ключевое значение для развития ядерной энергетики. В значительной степени эта проблема преувеличена в глазах мирового общественного мнения, если сравнить количество ежегодно образующегося отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) – приблизительно 10 000 тонн, с количеством 28 Гт парниковых газов (ПГ, CO<sub>2</sub>экв) - источником опасности глобальных изменений климата. В 2004 г. мировое производство электроэнергии (около 17 470 млрд. кВт·ч) внесло вклад в размере 11 Гт CO<sub>2</sub>экв в суммарный объем выбросов ПГ. Доля ядерной энергетики в производстве электроэнергии (16%) позволила избежать выбросов в объеме 2,0–2,2 Гт CO<sub>2</sub>экв., что свидетельствует об исключительно позитивной роли ЯЭ в мерах по снижению выбросов ПГ. При выборе вариантов энергетических стратегий для выполнения условий Киотского протокола используется величина затрат на 1 тонну предотвращенного выброса CO<sub>2</sub>экв. в течение жизненного цикла энерготехнологии. Сравнение с наиболее перспективными технологиями показывает, что ЯЭ находится в самой нижней области диапазона затрат, с заходом в отрицательную область: от -8 до 18 долл. США/т CO<sub>2</sub>экв. Отрицательные затраты свидетельствуют о растущем рыночном потенциале ЯЭ даже без выгод в контексте Киотского протокола [24].

Так же сильно преувеличены риски при традиционных способах обращения с РАО и ОЯТ. Как показывает мировой опыт, даже крупная авария не несет серьезных дозовых нагрузок, связанных с обращением с ОЯТ [25]. Предполагается, что захоронение РАО в глубокие геологические формации обеспечит безопасность населения на многие тысячелетия.

На основе сравнительной оценки ущерба природным ресурсам и окружающей среде от деятельности атомной и других отраслей экономики России (по состоянию на 2000 г.) был сделан вывод, что в регионах размещения ведущих предприятий атомной отрасли эти объекты не входят в число основных источников текущего экологического ущерба. Этот вывод не относится к прошлым ущербам, нанесенным природным комплексам на начальной стадии создания атомной отрасли в СССР в 1946–1956 годах (например, территория вокруг ПО «Маяк») [23].

Примером передовой структуры электроэнергетики может служить Франция, где более 90% энергетических ресурсов получают за счет работы АЭС и ГЭС, что самым благоприятным образом сказывается на экологии страны [20].

### **4. Ядерная энергетика в энергетической стратегии России**

**Национальная стратегия устойчивого развития** [26]. Можно вполне основательно судить о глубине и проработанности плана развития любой страны по действиям законодательной и исполнительной ветвей власти, направленным на решение задач, поставленных в «Повестке дня на XXI век» – главном международном документе, принятом на Всемирном форуме в Рио-де-Жанейро в 1992 году.



Концепция устойчивого развития обращает внимание на близорукость разделения задач на: а) первостепенные срочные и б) отложенные до лучших времен долгосрочные. Сила и профессионализм современного администрирования проявляются как раз в способности параллельного выявления и решения как неотложных, так и перспективных проблем. Следование парадигме устойчивого развития должно стимулировать разработку управленческих технологий на основе опережающего решения долгосрочных проблем.

При подготовке перспективных планов развития России задачи устойчивого развития, сформулированные в «Повестке дня на XXI век», оказались вне фокуса внимания общественности и правительственных структур. По состоянию на 2008 год, в России не было разработано никаких программных документов по таким важнейшим направлениям, как энергоэффективность экономики, ресурсосбережение, развитие возобновляемых источников энергии, загрязнение окружающей среды и др.

**Состояние и перспективы развития электроэнергетики в России** Для российской энергетики в последнее десятилетие XX века были характерны кризисные признаки: **системный кризис** (износ основных фондов, неэффективность использования топливных ресурсов, потребность во вводе новых мощностей); **инвестиционный кризис** (отсутствие ресурсов для решения ряда неотложных задач); **структурный кризис** (диспропорция в использовании первичных энергетических ресурсов, необходимость замещения газа углем и ядерным топливом, нулевое развитие ЯЭ) [27]. По состоянию на 2007 год в электроэнергетике страны был один из самых высоких показателей износа основных фондов (57,5%), проектный ресурс к 2010 году должен был быть отработан на 50% суммарной мощности всех электростанций при стабильно высоком росте спроса на электроэнергию [28]. При этом 9 млн. человек, проживающие на 2/3 территории России, остаются без электричества.

Согласно принятому прогнозу, предусматривается рост энергопотребления в России к 2015 г. до уровня 1426 млрд. кВт·ч/год (базовый вариант). Приоритетами территориального развития генерирующих мощностей являются: на ЕТР – максимальное развитие АЭС и гидроаккумулирующих электростанций (ГАЭС), техническое перевооружение электростанций, использующих газомазутное топливо; в Сибири – развитие ГЭС и ТЭС на угле; на Дальнем Востоке – развитие ГЭС, ТЭС на угле и газе. Для базового варианта потребность в суммарной установленной мощности электростанций определена в объеме около 300 ГВт в 2015 году и 350 ГВт в 2020 году. При этом 28% ожидаемых вводов придется на нетопливную энергетику (ГЭС и АЭС), тогда как топливная энергетика составит 72% от общего объема вводов (49% — газ, 23% — уголь) [29].

Директивы Энергетической стратегии [5] предписывают к 2020 годам за счет роста суммарной доли выработки электроэнергии на АЭС и ГЭС (с 32% в 2006 году до 36% в 2020 году) медленную трансформацию структуры потребления топлива на ТЭС в этот период: снижение доли газа с 68% до 56%, снижение потребления мазута с 3,6% до 1,6%; рост доли угля - с 25,3% до 39,5%.

Прогнозируемый рост цен на газ и ограниченность его ресурсов для электростанций вынуждают все в большей степени ориентировать развитие новых генерирующих мощностей на использование ядерной энергии, гидроэнергии, угля.

**Ретроспектива и состояние развития ядерной энергетики** Динамичное развитие электроэнергетики России в период 1960-1990 г.г. характеризовалось высокими темпами годового роста ядерной энергетики - в среднем около 1 ГВт в год установленной мощности и 5 млрд. кВт·ч в год производства энергии. Однако к началу 1990-х годов темпы роста упали почти до нулевой отметки [27].

С конца 1990-х годов наблюдается увеличение темпа прироста производимой на АЭС электроэнергии. Состояние ядерной энергетики России в 2004 году характеризовалось следующими показателями: устойчивый рост производства электроэнергии (около 9 млрд. кВт·ч в год) и КИУМ (около 1,5% в год - до 76 %); наличие резерва роста на действующих АЭС до 15 млрд. кВт·ч в год (ожидаемый спад на ТЭС в среднем на 15%); рост инвестиций в развитие; ввод новых мощностей АЭС в среднем около 0,2 ГВт в год; замещение газа до 45 млрд. м<sup>3</sup> за счет увеличения выработки электроэнергии на АЭС; сохранение тарифного преимущества АЭС в сопоставимых затратах (около 25%) [27].

К 2008 году 10 российских АЭС имели мощность 23,2 ГВт, доля АЭС в установленной мощности всех электростанций России составила 11,5%, а в производстве электроэнергии - около 16%. Предполагается, что повышение КИУМ на 10% (с 76% до 85%) на действующих АЭС даст дополнительно около 20 млрд. кВт·ч в год [30].

**Среднесрочные перспективы развития ЯЭ** Базовый вариант развития предполагает рост мощностей АЭС (ГВт) от 27 в 2010 году до 38,1 в 2015 году и 53,2 в 2020 году. При опережающем темпе роста ядерной энергетики доля АЭС в суммарной установленной мощности всех электростанций увеличивается от 11% в 2006 г. до более 15% в 2020 г. Для более умеренного варианта к 2015 г. планируется ввод в эксплуатацию 10 новых энергоблоков АЭС общей установленной мощностью не менее 9,8 ГВт; при этом общая установленная мощность АЭС достигнет 34 ГВт [27, 29]. В качестве **основных направлений развития ядерной энергетики** в среднесрочной перспективе выделяются следующие: модернизация, продление срока эксплуатации и воспроизводство действующих энергоблоков (до 0,5 ГВт в год); обеспечение темпа роста производства электроэнергии до 8 млрд. кВт·ч в год; повышение эффективности эксплуатации АЭС и снижение издержек производства электроэнергии за счет роста КИУМ до 85%; освоение инновационных технологий и ввод референтных блоков; социально-экономическое развитие регионов размещения АЭС [27].

**Долгосрочная стратегия развития ЯЭ** К долгосрочным задачам развития ЯЭ (2030-2050 годы) относятся развертывание инновационных ядерных технологий и формирование многокомпонентной ядерной и атомно-водородной энергетики.

Требования к крупномасштабным энерготехнологиям будущего можно свести к трем положениям [31]: независимость от исчерпаемых энергоресурсов (топливо должно воспроизводиться); процесс «сжигания» топлива и связанные с ним выбросы нелокализуемых отходов не должны деформировать естественные процессы в биосфере; локализуемые

отходы должны быть физически эквивалентны исходному топливному сырью и захораниваться в местах его извлечения или им подобным. Очевидно, что ни одна из существующих энерготехнологий этим требованиям не удовлетворяет.

Крупномасштабная ядерная энергетика — это энергетика на быстрых реакторах. Это очевидно сегодня, это было очевидно и на заре ядерной энергетике. При умеренном росте установленной мощности АЭС ядерная энергетика останется в течении ближайших десятилетий практически однокомпонентной с незначительной энергетической долей реакторов на быстрых нейтронах. В случае интенсивного роста ЯЭ решающую роль в ней будут играть реакторы на быстрых нейтронах. Необходимо наладить проектирование и производство безопасных и доступных с финансовой точки зрения реакторов малой и средней мощности [27, 31].

Будущее ядерной энергетике зависит от решения трех проблем: 1) исключить нелегальное переключение материалов ЯТЦ на военные или террористические цели; 2) исключить вероятность тяжелых радиационных аварий; 3) сделать РАО достаточно «чистыми» для захоронения их в геологических формациях. Главным барьером «естественной безопасности» должны являться законы природы, а не искусственные сооружения. Существенное снижение стоимости АЭС возможно только на основе реализации принципа естественной безопасности, что позволит перейти от стереотипа «чем дороже, тем безопаснее» к норме «**чем безопаснее, тем дешевле**». [31].

#### **Ссылки**

1. Наше общее будущее: Доклад международной комиссии по окружающей среде и развитию, представленный ООН в 1987 г. (пер. с англ.) – М.: Прогресс, 1989, 372 с.
2. Meadows D.H., Meadows D.L., Randers J., Behrens W.W.III, The Limits of Growth. A Report to the Club of Rome's Project on the Predicament of Mankind. - N.Y.: Universe Books, 1972.
3. Велихов Е. и др. Энергетика вчера, сегодня и завтра. – Бюллетень по атомной энергии (Специальный выпуск), май-июнь 2008 г., с. 6-9.
4. Макдоналд А. Ядерная энергетика: положение дел в мире. – Бюллетень МАГАТЭ, 49-2 (март 2008 г.), с. 45-51.
5. Энергетическая стратегия России на период до 2020 года. – Утверждена распоряжением Правительства Российской Федерации от 23 августа 2003 г. № 1234-р.
6. Сб. Нефтегазовая промышленность России в 1990 годах. М., АО ВНИИОЭНГ, 1999. БИКИ, 16.03.2000 г.
7. Баранов А.И. Накануне "большого передела". - Недра России, № 6, 1999, с. 38-43.
8. Производство важнейших видов промышленной продукции в 2008 г. – Росстат, 2009.
9. Путь в XXI век: Стратегические проблемы и перспективы российской экономики – М.: Экономика, 2000. – с. 377-378.
10. Энергетическая стратегия России на период до 2030 года (проект) // Рабочая группа по энергоэффективности и развитию возобновляемой энергетики Комитета по энергетической политике Российского союза промышленников и предпринимателей, М., 2008.
11. Levine R.M., Wallace G.J. The Mineral Industries of The Commonwealth of Independent Armenia, Azerbaijan, Belarus, Georgia, Kazakhstan, Kyrgyzstan, Moldova, Russia, Tajikistan, Turkmenistan, Ukraine and Uzbekistan // U.S. Geological Survey Minerals Yearbook 2004.
12. Стратегия развития атомной энергетики России в первой половине XXI века (Основные положения). // Бюллетень ЦОИ Миантома России, № 6, 2000, с. 4-17.
13. Евстигнеев В.М. Гидроэнергия <http://science.viniti.ru/>
14. Тарараева Е. Перспективы ветроэнергетики в странах Европы // Бюллетень по атомной энергии, № 12, 2004, с. 42-43.
15. Милов В. Эффективность – вот главная альтернатива. - Le Monde diplomatique, февраль 2007, № 2, с. 12. (Русское издание, «Новая газета», № 15, 2007).
16. Анисимова А. Энергосбережение в России - успеть, чтобы выжить // ИТАР-ТАСС 08.10.2007 ([http://www.itartass.spb.ru/?url=articleread&article\\_id=80](http://www.itartass.spb.ru/?url=articleread&article_id=80)).
17. Нормы радиационной безопасности - НРБ-99/2009. СП 2.6.1.2523–09 – М., 2009, 70 с.
18. Ветров В.А. Экологическое нормирование – основа стратегии устойчивого развития. // *В кн.*: «Научные аспекты экологических проблем России» - Труды II Всероссийской конф. (Москва, 29-31 мая 2006 г.) – М., 2006, с. 72-82.
19. Recommendations of the ICRP: ICRP Publication 60 // Ann. ICRP, 21 (1-3) - Oxford, Pergamon Press, 1991.
20. Большов Л., Арутюнян Р., Линге И. и др. Ядерные технологии и экологические проблемы России в XXI веке. – Бюллетень по атомной энергии, 5/2003, с. 15-19.
21. Семенов В.Г. Экоцентрическая парадигма – возможное препятствие на пути развития атомной отрасли. // Бюллетень по атомной энергии № 5, 2007, с. 33-38.
22. Радиационная обстановка на территории России и сопредельных государств в 2007 году. Ежегодник. Под ред. С.М. Вакуловского. – ГУ «ВНИИГМИ-МЦД», 2008 – 284 с.
23. Ветров В.А. Сравнительная оценка ущерба природным ресурсам и окружающей среде от деятельности атомной и других отраслей экономики России // *В кн.*: Научные аспекты экологических проблем России - Труды Всероссийской конференции, Москва, 13-16 июня 2001. Том 2. – М., «Наука», 2002, С. 493 – 504.
24. ВОСТОК-МЕДИА: Киотский протокол – «за» и «против» // (<http://antiatom.ru/ab/node/722>)
25. Экологическая безопасность обращения с облученным ядерным топливом. (По материалам ИБРАЭ «Об экологической безопасности обращения с облученным ядерным топливом», 2001) – Бюллетень по атомной энергии, 2/2002, с. 17–21.
26. Марфенин Н.Н. Устойчивое развитие России сегодня. Предисловие к Ежегоднику «Россия в окружающем мире – 2008». // В сб.: Россия в окружающем мире: 2008 (Аналитический ежегодник, вып. 11). – М.: Изд-во МНЭПУ, 2009.

27. Рачков В.И. Стратегия развития ядерной энергетики России // В кн.: «Экономика ядерной энергетики» (конспект лекций). Учебная книга Экономико-аналитического института МИФИ. – М., 2004.
28. Андрианов А.Н. Место и роль ядерной энергетики в ТЭК России. // Бюллетень по атомной энергии № 3, 2007, с. 19-22.
29. Генеральная схема размещения объектов электроэнергетики до 2020 года. (Распоряжение Правительства РФ от 22.02.2008 г. № 215р). – Бюллетень по атомной энергии, март 2008 г., с. 50-64.
30. Велихов Е. и др. Энергетика вчера, сегодня и завтра. – Бюллетень по атомной энергии (Специальный выпуск), май-июнь 2008 г., с. 6-9.
31. Рачков В.И. Стратегия развития ядерной энергетики: устойчивый рост и инновационное развитие. // Бюллетень по атомной энергии № 5-6, 2008, с. 10-13.

## **СОЗДАНИЕ СИСТЕМЫ НАКОПЛЕНИЯ И ОРГАНИЗАЦИИ ДОСТУПА К ЗНАНИЯМ В ОБЛАСТИ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РК – "БАЗЫ ЗНАНИЙ ПО АЭ".**

Батырбеков Э.Г., Цай Е.Е., Уханов С.В.

*РГП «Национальный ядерный центр РК», г. Курчатов, Республика Казахстан*

### **Введение**

Основной предпосылкой проведения работ в области исследования технологий хранения и представления информации стало лавинообразное увеличение объема данных предприятия в электронных форматах. При отсутствии надлежащих методик и средств объединения, структуризации и обеспечения доступа к информационным массивам повышаются риски искажения данных и потери качества работы с информацией, связанные с многократным дублированием, отсутствием контроля версий документов, низкой доступностью из-за проблем поиска. Хаотичное накопление информационных объектов, их размещение в неопределенных сетевых узлах, несоответствие названия электронного носителя информации ее сути дает эффект, обратный ожидаемому повышению скорости и качества работы с информацией.

Для эффективного развития наукоемкой отрасли необходимо обеспечить работников всех подразделений и уровней своевременной и качественной информацией. Для обеспечения преемственности кадров требуется механизм накопления и передачи знаний молодым специалистам. Информационные ресурсы в определенной области науки или техники, представленные компанией, являются важным показателем, подтверждающим ее компетенцию в данной области. Все эти факторы в полной мере относятся к атомной отрасли, Национальному ядерному центру и его дочерним предприятиям.

В 2009 году МАГАТЭ в рамках программы по сохранению ядерных знаний выпустило документ, посвященный созданию порталов знаний на АЭС. Доклад получил название "Development of Knowledge Portals for Nuclear Power Plants" и выпущен под номером NG-T-6.2. В настоящее время во многих странах созданы и развиваются Центры сохранения знаний и опыта - Центры ядерного образования в том числе Европейская сеть ядерного образования European Nuclear Education Network (ENEN), Азиатская сеть Asian Network for Education in Nuclear Technology (ANENT), Международный ядерный университет.

В НЯЦ РК созданы достаточные предпосылки для создания информационной системы "База знаний" по проблемам развития атомной отрасли РК. Существует корпоративная сеть передачи данных, оснащенность персональными компьютерами сотрудников достигает почти 100%, ведутся научно-исследовательские работы, специалисты регулярно посещают семинары, учебные курсы и другие мероприятия, обеспечивающие приток новой информации со стороны международного сообщества. Для решения задачи накопления и предоставления знаний в отрасли необходимо создать технологию сбора, структурирования и обеспечения доступа с необходимым уровнем авторизации ко всем этим знаниям.

### **Начало работ. Исследование предметной области**

В 2009 году начались исследования сетевых и информационных технологий, связанных с построением базы знаний как будущего объекта корпоративной сети НЯЦ РК. Изучались информационные структуры данных, которые могли быть размещены в базе, форматы документов, возможные ограничения доступа к информации. Параллельно с этим рассматривались современные технологии, платформы и программные комплексы для создания систем обработки и представления информации, в первую очередь текстового и гипертекстового, библиографического и мультимедийного характера.

На начальной стадии исследования была сформулирована цель работы – построение информационно-поисковой системы "База знаний по проблемам атомной энергетики" и определено основное назначение системы - повышение результативности использования сотрудниками предприятия операционных и аналитических данных путем интеграции их в единую автоматизированную систему с удобным интерфейсом ввода, поиска и представления информации.

Для уточнения задачи был выполнен обзор информационных ресурсов компании, используемых для научно-исследовательской работы, инженерно-технического сопровождения и соблюдения регламентов безопасности.

Составлена обобщенная классификация информационных материалов в электронном виде, включающая научно-технический и административный разделы [1]:

Научные информационные ресурсы:

публикации научных сотрудников предприятия и специалистов, сборники научных конференций;  
научно-популярные издания РГП НЯЦ РК; каталоги библиотек;  
информация о научных проектах, конкурсах и грантах, отчеты о НИР;  
информация о научных коллективах и их разработках; научная переписка;  
информация о базах данных; экспериментальные данные;  
информация о материально-технической базе фундаментальных исследований РГП НЯЦ РК;

Административные информационные ресурсы:

информация о структуре РГП НЯЦ РК, о структуре его подразделений, адресно-справочные и контактные сведения;  
кадровая информация;  
нормативно-правовые документы;  
финансовые документы;  
хозяйственно-административные документы и переписка;  
внутренний документооборот;

Исследование характеристик и типов предполагаемого содержимого массивов базы знаний выявило ряд проблем, препятствующих развитию технологий и практик управления знаниями в компании:

а. Большое разнообразие форматов и типов файлов, содержащих информацию (документы Microsoft Office нескольких версий, формат PDF, простой текстовый формат, гипертекст HTML и XML, изображения и видеоролики). Как следствие – значительные трудности с единым интерфейсом представления информации.

б. Отсутствие регламентированного центрального хранилища электронной информации, методик и процедур резервирования данных, что значительно повышает риск утери или искажения уникальных знаний.

с. Принадлежность определенных информационных объектов к категории "чувствительной информации" усложняет организационно-правовой вопрос размещения их в централизованных хранилищах и представления доступа к ним.

д. Назначение информационно-поисковой системы "База знаний" предполагает долгосрочное использование и постепенное накопление данных, что требует прогнозирования перспективной программно-аппаратной базы для создания системы.

Таким образом, можно поставить ряд задач, решение которых позволит достигнуть намеченной цели и создать корпоративную информационно-поисковую систему типа "База знаний" в атомной отрасли.

- I. Сбор и долговременное хранение значительного объема информации, представленной различными форматами и первичными структурами данных.
- II. Структурирование и формализация исходных данных для поддержки дальнейшей интеграции в унифицированные информационные массивы.
- III. Создание многофакторной поисковой машины для обеспечения высокой релевантности поиска и выборки информации по большому объему данных.
- IV. Централизованная авторизация доступа к информации на основе учетных данных пользователей корпоративной сети.
- V. Разработка универсального интерфейса пользователя для различных операционных систем и рабочих станций, включая мобильные устройства.
- VI. Размещение системы на платформе с перспективной архитектурой и возможностями обеспечения безопасности данных на физическом уровне.

Современное развитие информационных технологий и вычислительной техники в принципе позволяет решить все указанные задачи, но изучение рынка универсальных программно-технических комплексов не дало результата, удовлетворяющего всем условиям. Очевидно, наиболее приемлемым решением является самостоятельная разработка технологии ведения процессов обработки и представления информации для системы "База знаний в атомной отрасли". Обзор технических средств, программных платформ и технологических решений в области построения систем управления информацией позволил определить основные этапы процесса создания собственной корпоративной базы знаний.

**Детализация постановки задачи.**

Основой любой системы, оперирующей с большим объемом исходных данных, является хранилище информации. В последние 2-3 года среди крупных транснациональных корпораций наметилась тенденция к переходу на технологии "облачных" хранилищ, т.е. системы распределенного хранения данных в глобальной сети Интернет. Но в основной массе пользователей классическим вариантом хранилища является создание или аренда центра хранения данных на базе выделенного сервера управления и одного или нескольких внешних дисковых массивов.

Автором концепции Data Warehouse (Хранилищ Данных) является Б. Инмон, который определил Хранилища как "предметно ориентированные, интегрированные, неизменяемые, поддерживающие хронологию наборы данных, организованные для целей поддержки управления", призванные выступать в роли "единого и единственного источника истины", обеспечивающего менеджеров и аналитиков достоверной информацией необходимой для оперативного анализа и принятия решений [2]. В основе концепции Data Warehouse лежат две основополагающие идеи:

Интеграция ранее разьединенных детализированных данных из исторических архивов, традиционных систем обработки данных, а также из внешних источников, в едином хранилище, их согласование и возможно агрегация.

Разделение наборов данных, используемых для операционной обработки и наборов данных, используемых для решения задач анализа.

Предметом концепции Data Warehouse являются данные как самостоятельный объект предметной области, порожденный в результате функционирования ранее созданных информационной систем. Концепция предполагает не просто единый логический взгляд на данные организации, но реализацию единого интегрированного источника данных. Кроме единого справочника метаданных, средств выгрузки, агрегации и согласования данных, концепция Data Warehouse подразумевает интегрированность, неизменчивость, поддержку хронологии и согласованность данных [3].

Немаловажным фактором, влияющим на производительность хранилищ информации, является структура хранения данных и методики взаимосвязи между ее уровнями. В связи с необходимостью обработки разнородных, иногда слабо структурированных данных, структура хранилищ должна обеспечивать требуемый баланс между производительностью и поддержкой множества форматов исходных данных. Разнообразие форматов и типов данных, предназначенных для хранения и представления в системе, обуславливает необходимость реализации нескольких способов функций ввода, редактирования, рецензирования и другой предварительной обработки исходных данных.

Наиболее распространенный способ заполнения хранилища данных – это ручной ввод объектов базы знаний, сопровождаемый созданием идентификационной карты объекта. Поля информационной карты должны содержать необходимый и достаточный набор формальных признаков для классификации объекта базы знаний и поиска его по каталогу. Формальные признаки определяются типом объекта (текстовый документ, таблицу, файл мультимедиа и др.) и характером информации, которую он содержит.

Другой очевидный способ ввода данных – импорт готовых информационных массивов и банков данных в базу знаний. Он предусматривает предварительную обработку некоторого готового банка данных (справочника, электронной библиотеки публикаций, нормативного перечня и пр.) для дальнейшего использования в базе знаний. В процессе создания и развития информационной системы "База знаний" могут быть найдены и другие способы пополнения и актуализации информационного банка системы.

Поисковая машина является основным инструментарием системы "База знаний". От производительности и точности работы поисковых алгоритмов зависит качество работы системы, основной целью которой является предоставление знаний по набору ключевых слов и параметров. Поисковый механизм должен предусматривать применение многофакторных методов поиска, в том числе

- полнотекстовый поиск;
- поиск по ключевым словам;
- поиск по атрибутам (формальным признакам) информационного объекта;
- семантический и морфологический поиск.

Для повышения точности обработки поисковых запросов необходимо создать банк ключевых терминов – глоссарий системы в области атомной науки и энергетики. В то же время не стоит забывать, что помимо точности, важным критерием качества поисковой машины является полнота выполнения запроса. Эти критерии взаимосвязаны и при повышении уровня одного из них снижается другой[4]. На этапе создания и внесения первоначального массива информации в систему точность поиска является определяющим критерием, т.к. общее количество информационных объектов будет относительно малым. По мере наполнения хранилища данных значение полноты выполнения поискового запроса будет расти, с одновременным увеличением числа результатов исполнения поискового запроса. Потребуется вводить дополнительные уточняющие атрибуты поиска для отсеивания менее подходящих документов.

Наличие в системе чувствительной информации накладывает дополнительные требования по авторизации доступа к определенным банкам данных и отдельным информационным объектам базы знаний. Для предотвращения случайного или умышленного искажения данных в хранилищах необходимо обеспечить строгое регулирование доступа с правами добавления, редактирования или удаления данных. Изначально следует определить две категории пользователей системы – это посетители (гости, анонимные пользователи) и корпоративные (авторизованные, зарегистрированные) пользователи.

Для посетителей базы знаний доступны функции поиска и просмотра информации публичного типа, имеющей свободное распространение (например, опубликованных в научных издательствах статьях, монографиях, отчетах и т.д.). Посетители ни в коей мере не могут получить права редактирования каких-либо данных в базе знаний.

Авторизованные пользователи могут быть наделены различным набором прав в соответствии с должностными полномочиями, служебной необходимостью и другими соображениями. В системе необходимо предусмотреть набор ролей, сочетание которых даст возможность предоставления авторизованным пользователям различных прав доступа к информационным объектам и банкам данных базы знаний. Типовой набор состоит из 4 ролей пользователя – "читатель", "автор/редактор", "эксперт" и "администратор". Роли пользователей в различных разделах и банках данных системы могут отличаться, т.е. пользователь может быть редактором либо экспертом одного раздела и читателем во всех остальных.

Интерфейс пользователя определяет эргономичность системы, удобство ее применения и, в конечном счете, полнота и качество получения информации из базы знаний. Интерфейс является единственным средством обмена данными между пользователем и системой, поэтому его проектированию и реализации необходимо уделить самое тщательное внимание. Информационно-поисковая система "База знаний в атомной науке и энергетике" является инновационной технологией, развивающейся и изменяющейся в процессе накопления данных. Поэтому интерфейс

пользователя системы должен быть построен на гибкой и открытой архитектуре, позволяющей в случае необходимости вносить коррективы в дизайн и функциональность.

Помимо корпоративных пользователей системы, часть информации базы знаний будет доступна внешним посетителям через сеть Интернет. В этом случае логичным решением является создание интерфейса пользователя на базе web-технологий. Тонкий клиент на основе web-технологий может быть запущен в любом web-браузере, что значительно упрощает процесс подключения к системе "База знаний".

Универсальный Web-клиент имеет ряд преимуществ перед стандартным Desktop-клиентом. В первую очередь, web-клиент обеспечивает пользователю системы независимость от платформы и операционной системы клиентской машины. Немаловажным фактором является значительное упрощение системы гиперссылок на связанные материалы при размещении интерфейса в web-браузере, что весьма актуально для информационно-поисковой системы "База знаний". И самое главное преимущество интерфейса, построенного на базе web-технологий, заключается в одномоментном применении всех изменений дизайна и функциональности, сделанных на стороне сервера web-приложений системы.

Основным фактором при выборе платформы было обеспечение полной совместимости с имеющейся сетевой и компьютерной инфраструктурой, наличие опыта специалистов предприятия в управлении операционными системами и приложениями, а также перспективы развития системных и инструментальных программных средств. Исторически в корпоративной сети предприятия для построения внутренних сетевых сервисов применяются решения Microsoft, поэтому в качестве платформы для информационно-поисковой системы "База знаний АЭ" целесообразно также использование программных средств Microsoft. Такое решение позволит в полной мере использовать систему авторизации, основанную на глобальном каталоге (Active Directory) корпоративной сети предприятия.

#### **Моделирование систем сбора и обработки первичной информации.**

После разработки основной концепции будущей системы начались работы по моделированию и созданию рабочего прототипа подсистем сбора, структуризации, хранения и предоставления информации. Эта система получила рабочее название "система ведения научно-технической информации". В последнем квартале 2009 года и в течение всего 2010 года были проведены лабораторные испытания нескольких вариантов систем сбора и структуризации данных, хранилища данных и интерфейсов пользователя.

В качестве одного из вариантов рассматривалось применение системы электронного документооборота с модулем электронного архива в качестве подсистемы сбора и структуризации и хранилища данных. Были протестированы несколько программных продуктов российских производителей – "Евфрат-Документооборот" версии с 12 по 14, DocsVision версии 3.5 и 4.0, DIRECTUM версии 4.X, NauDoc версии 4.2 и 4.3. Эти решения базируются в основном на платформе Microsoft Windows Server, СУБД Microsoft SQL Server. Исключением является система электронного документооборота NauDoc, построенная на архитектуре с открытым кодом и на объектной базе данных ZODB. Практически во всех версиях в качестве клиента может использоваться Web-браузер, за исключением ранних версий "Евфрат-Документооборот".

В ходе моделирования системы ведения информации "Базы знаний" отрабатывались алгоритмы ввода и структурирования информации. Алгоритм ввода предусматривал трехэтапную процедуру прохождения документа: ввод документа автором, верификация информации экспертом, добавление формальных атрибутов заголовка и размещение в хранилище инженером по знаниям.

Основным положительным фактором использования системы документооборота являются готовые наборы функций сбора и структуризации документов, структуры корпоративных справочников (по сотрудникам, подразделениям, типам документов и пр.). Также в плюсы такого решения можно записать наличие типовых интерфейсов пользователя, выполненных, как правило, в стиле клиента электронной почты. Однако следует учитывать недостаточную эффективность интерфейса системы с точки зрения информационно-поисковых функций. Кроме того, были выявлены недостатки, связанные с низкой адаптивностью структур данных, сложности с добавлением атрибутов, отсутствие возможности обработки мультимедийной информации, а также приняты во внимание финансовый и организационный вопросы внедрения электронного документооборота. По результатам анализа соотношения затрат на внедрение системы документооборота в качестве каркаса для информационно-поисковой системы "База знаний" и ожидаемого эффекта от ее применения было принято решение отказаться от данного варианта в пользу самостоятельной разработки системы ведения информации.

Для разработки системы, обеспечивающей групповую работу с большим количеством разнородной информации, требуется применение платформы для управления информационной инфраструктурой. В настоящее время на рынке корпоративных решений распространение получили такие программные продукты, как Microsoft SharePoint Server, IBM Lotus Notes/Domino, EMC Documentum.

Платформа EMC Documentum отличается очень качественным и масштабируемым решением для хранения большого количества документов с развитой системой обеспечения безопасности данных. В системе имеется достаточно развитая поисковая машина со скоростными алгоритмами. Базовая функциональность позволяет реализовать стандартную схему документооборота (управление записями, управление договорами, управление персоналом), существуют широкие возможности по доработке существующих и созданию новых алгоритмов автоматизации информационного сопровождения рабочих процессов. Следует заметить, что среда разработки весьма сложна для понимания и требует длительной подготовки специалистов-разработчиков и системных администраторов.

Основными минусами этой системы следует считать высокую стоимость владения системой (свыше 800 000\$ на 1000 пользователей), отсутствие демонстрационных версий продукта и очевидную сложность разработки технологии ведения информации на ее основе.



Платформа Microsoft SharePoint Server представляет собой набор инструментов, технологий и шаблонов интерфейсов пользователя для создания корпоративного информационного Web-портала. Основная задача портала - централизованное хранение и обработка важной для бизнеса информации. Портал позволяет упорядочить хранение и права доступа к документам и определить правила их обработки. Новые усовершенствованные функции управления информацией в Microsoft SharePoint Server 2007 можно разделить на 3 направления:

- управление документацией;
- управление данными;
- управление содержимым web-сайтов

Корпоративный портал может объединять несколько корпоративных приложений в интрасети и в Интернете, что позволяет организации не зависеть от отдельных раздробленных информационных систем.

Разработка программного решения на базе Microsoft SharePoint требует наличия опытных Web-программистов, знакомых со средой разработки Microsoft Visual Studio и платформой Microsoft .NET Framework. Следует также учесть, что Web-портал на основе Microsoft SharePoint Server обеспечивает работу только Web-приложений, не позволяя интегрировать стандартные desktop-приложения. Однако программный комплекс на основе SharePoint в первом приближении имеет вполне достаточный набор компонентов для создания полноценной информационно-поисковой системы "База знаний в области атомной науки и энергетики"[5]:

- набор Web-приложений для организации совместной работы;
- функции и компоненты для создания порталов;
- модуль поиска информации в документах и информационных системах;
- функции управления рабочими процессами и систему управления содержимым; масштаба предприятия;
- модуль создания форм для ввода информации.

Возможности SharePoint Server широко используются многими программными комплексами, предназначенными для коллективной работы с данными, в том числе – системами управления документами, комплексами бизнес-аналитики и др. Главным преимуществом SharePoint Server является простота использования, ориентированность на пользователя, а не на разработчика, а также интеграция со всеми продуктами Microsoft. Среди недостатков системы можно отметить слабую масштабируемость (наращивание функциональности за счет добавления новых модулей) и недостаточную производительность при работе большого количества (сотен) пользователей. Поэтому, в случае возникновения необходимости расширения корпоративной системы на большое количество пользователей, потребуется применение более специализированного интеграционного решения.

Платформа IBM Lotus Notes/Domino является стандартом де-факто для организации классического документооборота в государственных учреждениях. Данное решение включает в себя ряд ключевых технологий для совместной работы с документами:

- средства электронной почты, интегрированная система обмена мгновенными сообщениями;
- документно-ориентированная база данных;
- система репликации;
- интегрированные средства защиты информации;
- Internet/intranet , web – технологии;
- средства интеграции с приложениями сторонних разработчиков.

Главным преимуществом систем, базирующихся на платформе Lotus Notes/Domino, является полная интеграция всех функций и структур данных в единственном программном продукте. Встроенные средства разработки и администрирования приложений в сочетании с мощными средствами авторизации и защиты информации позволяют создать информационную систему, отвечающую самым строгим правилам обработки информации, в том числе для государственных структур.

Среди отрицательных качеств можно указать повышенную сложность разработки систем, требующую наличия квалифицированных специалистов, а также предпочтительное использование клиента Lotus Notes для достижения полной функциональности вместо web-ориентированного клиента. Но главным недостатком решения, построенного на Lotus Notes/Domino, является функциональная направленность более на групповую обработку документов офисного типа, чем на структурирование, поиск и представление информации. Для системы "База знаний" основной функциональной нагрузкой является долговременное хранение, поиск и представление динамически связываемых информационных объектов, а предпочтительным интерфейсом пользователя – web-клиент для обеспечения доступности информации.

#### **Выбор платформы и инструментального программного обеспечения**

Изучив технологический, информационный и финансовый аспекты различных платформ для создания системы "База знаний", было принято решение использовать решение на базе Microsoft SharePoint Server, как наименее затратное и наиболее подходящее к общим условиям задачи. Программный продукт Microsoft SharePoint Server тесно интегрирован с серверным решением для баз данных Microsoft SQL Server и при развертывании использует экспресс-версию СУБД Microsoft SQL Server. Данная версия имеет некоторые технические ограничения, которые делают её непригодной для развертывания больших баз данных, но вполне приемлемой для ведения программных комплексов в масштабах небольшой компании или в процессе проектирования. Экспресс-версия СУБД содержит полноценную поддержку новых типов данных, в том числе XML-спецификации. Фактически, это полноценный MS SQL Server, включая все его компоненты программирования, поддержку национальных алфавитов и Unicode.

При переходе к режимам опытной и промышленной эксплуатации самым оптимальным выбором является расширение СУБД MS SQL Server Express Edition до полноценной версии Standard или Enterprise. Это позволит снять



ограничения на количество адресуемой памяти (до 1 Гб) и размер файла базы данных (до 4 Гб), при этом полностью сохранить структуру данных и встроенные функциональные возможности. В SQL Server 2005 встроена поддержка .NET Framework. Благодаря этому хранимые процедуры БД могут быть написаны на любом языке платформы .NET, используя полный набор библиотек, доступных для .NET Framework, включая Common Type System (система обращения с типами данных в Microsoft .NET Framework). Это повышает производительность в сравнении с общими алгоритмами Windows, так как алгоритмы распределения ресурсов специально настроены для использования в структурах SQL Server.

Для обеспечения безопасности данных SQL Server имеет развитые средства мониторинга, резервирования и восстановления информации в случае программного или аппаратного сбоя. SQL Server поддерживает избыточное дублирование данных по нескольким сценариям. Встроенная в SQL Server 2005 комплексная платформа бизнес-аналитики - средства интеграции, анализа данных и формирования отчетности - позволяет превращать накопленные данные в знания о бизнесе и способствует ускорению процесса принятия правильных решений.

На основании проведенных работ по анализу существующих программных платформ для построения корпоративной информационно-поисковой системы "База знаний в области атомной энергетики" была разработана и реализована действующая модель системы. Основным назначением модели являлась отработка методик сбора и структурирования первичной научно-технической и нормативно-справочной информации. Информационное и программное обеспечение системы включает в себя следующие компоненты (Рисунок 1):

- Платформа .NET Framework; интегрированный компонент Windows, поддерживающий создание и выполнение приложений и web-служб XML.
- Среда разработки(IDE): Microsoft Visual Studio 2008 SP2; основной язык разработки приложений и функциональных модулей: C# (Си шарп). Для разработки Web-ориентированных приложений была использована среда ASP.NET MVC Framework («База специалистов атомной отрасли», «INIS»).
- Интеграционная платформа Microsoft SharePoint Server 2007; интегрированный набор серверных приложений, обеспечивающий централизованное хранение и обработку информации, включая возможности управления информацией и корпоративного поиска, ускорение совместно выполняемых бизнес-процессов и упрощение обмена данными между подразделениями.
- Базовая структура данных Windows SharePoint Services (WSS) — платформа для развертывания и управления содержимым. Является основой для размещения файловых объектов и каталогов хранилища. Предоставляет базовые возможности поиска информации, систему управления содержимым, разграничение прав доступа, возможности расширения с помощью web-parts (web-частей).
- Система управления базами данных – MS SQL Server 2005/2008.

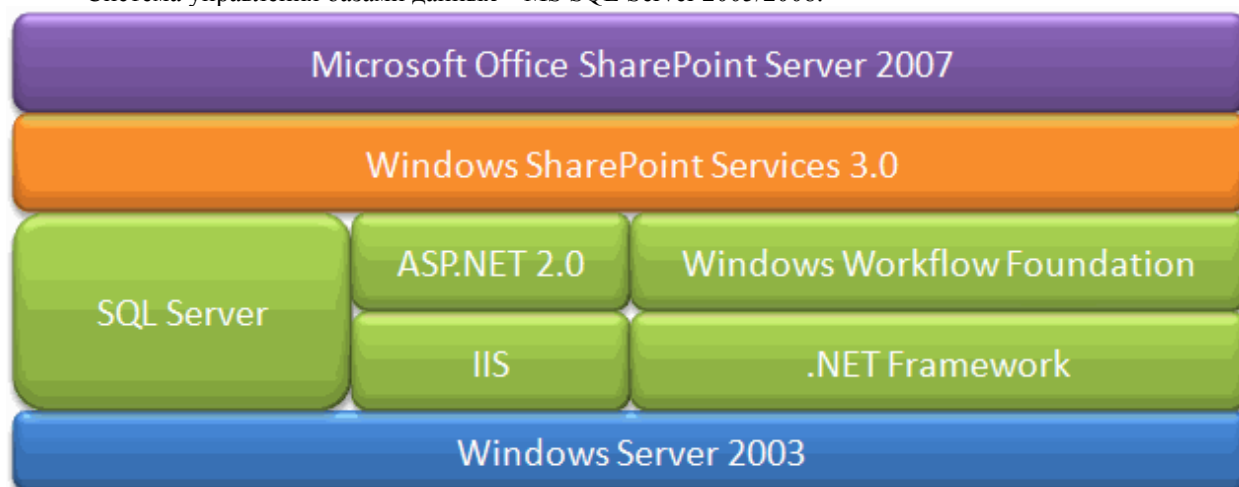


Рисунок 14 – Информационное обеспечение.

Наибольшую функциональность и гибкость системы обеспечивают приложения, интегрированные в порталную систему, имеющие возможность настройки и позиционирования на странице пользователя. Механизм web-частей SharePoint позволяет беспрепятственно расширять при необходимости функциональность информационно-поисковой системы для дальнейшего развития.

#### **Создание рабочего прототипа информационной системы "База знаний"**

В 2009-2010 годах были завершены работы по исследованию информационных технологий и программных решений, позволяющих обеспечить процесс создания и сопровождения информационно-поисковой системы "База знаний". В конце 2010 года началось создание рабочего прототипа информационной системы на основе выбранных программных решений и технологий. Важным принципом создания корпоративной информационной системы является ориентированность на Web-технологии. В настоящий момент Web-среда является наиболее гибкой, удобной для представления разнородной информации, обеспечивающей эргономичный пользовательский интерфейс. Web-среда базируется на гипертекстовых языках разметки документов, самым технологичным из которых является стандарт XML. В программных решениях Microsoft поддержка стандарта XML реализована на платформе Microsoft .NET. В состав пакета прикладных программ Microsoft Office входит приложение для создания и обработки XML-документов (инструментарий XML) InfoPath. Таким образом, использование стандарта и платформы XML для

реализации интерфейса и алгоритмов агрегации данных при представлении информации КИС «База знаний» является наиболее очевидным и оптимальным решением.

#### ***Разработка и интеграция программных модулей системы***

На этапе моделирования и построения рабочего прототипа системы была выполнена разработка и интеграция в портал следующих программных модулей системы:

- Модуль «База специалистов по атомной энергетике»;
- Модуль регистрации пользователей;
- Поисковый модуль;
- Электронный архив документации.

База специалистов по атомной энергетике предназначена в первую очередь для составления общей картины человеческих ресурсов предприятия. Дополнительной функцией этого программного комплекса является возможность ведения личной информации пользователями системы по набору параметров:

- Биографические данные (дата и место рождения, краткая автобиография и т.п.)
- Образование (ВУЗ, учёная степень, годы обучения),
- Карьера или трудовая биография (места и период работы, занимаемые должности)
- Контактная информация (адреса, телефоны, информация о подразделении предприятия),
- Список работ, публикаций, проектов в которых принимал участие пользователь, степень его участия в проектах.

Одним из ключевых моментов концепции базы знаний в области атомной науки и энергетики является обязательное определение авторов и владельцев информационных ресурсов. На этапе моделирования системы для реализации функций определения авторства принято решение о разработке приложения «База специалистов атомной отрасли», выполняющего функции справочного модуля системы ведения научно-технической информации.

Модуль регистрации пользователей предназначен для аутентификации пользователей системы и является частью системы авторизации доступа к информации "Базы знаний". Программный модуль регистрации является комплексом классов и функций, организующих управление пользователями информационно-поисковой системы и распределение прав доступа на объекты системы путём интеграции с глобальным каталогом (Active Directory) сетевого контроллера домена предприятия.

Модуль регистрации пользователей обеспечивает ряд необходимых функций и процедур авторизации и регулирования доступа к информационным ресурсам "Базы знаний":

- администраторы системы получают возможность удалённого управления ролями, пользователями и группами информационной системы посредством web-интерфейса, обеспечивающим функциональность, аналогичную каталогу Active Directory;
- пользователи получают возможность делегирования прав на распределение доступа к объектам и функциональным модулям информационной системы, владельцами которых они являются;
- пользователи имеют возможность смены учётной записи с сохранением параметров сеанса во избежание повторной аутентификации.

Проверка подлинности — это процесс, позволяющий точно идентифицировать пользователей узла. Проверка подлинности гарантирует, что пользователи действительно являются теми, за кого себя выдают. Клиенты, прошедшие проверку подлинности, называются участниками безопасности. В продуктах и технологиях SharePoint проверка подлинности выполняется на основе учетных записей безопасности каталога Active Directory сетевой операционной системы Windows Server.

Поисковые возможности системы SharePoint Server образуют базу для реализации мощных механизмов, подходящих для внутренних и внешних сетей крупных предприятий, предоставляя простые средства настройки диапазонов поиска и пользовательского интерфейса. Задача поискового модуля системы "База знаний" – обеспечение многофакторного поиска информации по различным банкам данных хранилища, в том числе:

- по личным параметрам пользователя;
- по научным работам и публикациям, проектам;
- по организационной, технической и нормативной документации (отчёты о НИР и ОКР);
- по определённым областям знания, статьям wiki-модуля;
- по ключевым словам карточек объектов.

Для повышения качества работы пользователей с поисковыми алгоритмами модуль поиска обеспечивает следующую функциональность:

- предоставление интуитивно понятного интерфейса, обладающего интерактивными возможностями: механизм «автозаполнения», контроль результатов;
- встроенные функции контроля параметров запроса, во избежание выдачи пользователю некорректных результатов;
- обеспечение формирования результатов запроса в порядке актуальности запросов по данной теме, либо по логической схеме, соответствующей тематике запроса.

Электронный архив документации является прототипом системы обработки корпоративной информации, разработанным для решения задач хранения внутренней документации предприятия и обеспечения коллективной работы с документами. Данный модуль предназначен для повышения эффективности процессов хранения, поиска и работу с документами пользователей системы. В соответствии с поставленными задачами модуль электронного архива обеспечивает следующую функциональность:

- хранение различных форматов документации в узлах отделов, узлах предприятий;
- возможность коллективной работы с документами;
- возможность поиска документов по категориям и ключевым словам;
- возможность добавления поисковых параметров к документам;
- гибкая система распределения прав доступа к документам интегрированная с AD;
- контроль версий документов и возможность восстановления документов прежних версий.

Современные Web-технологии позволяют организовать хранилище в виде связанных гиперссылками слабо структурированных информационных объектов. Основным принципом этих хранилищ является предоставление возможности ввода и редактирования данных широкому кругу пользователей – Wiki-Web-сайт. При этом сохраняется история изменений, позволяющая обращаться к ранним версиям документов. Реализация этой технологии в системе "База знаний" на платформе Microsoft SharePoint Server получила название Wiki-модуля.

Для обеспечения санкционированного доступа к материалам WIKI-модуль через портал SharePoint интегрирован с контроллером домена Active Directory корпоративной сети предприятия. Документы в wiki-модуле могут редактироваться, но в процессе редактирования документ доступен только одному пользователю. Остальные пользователи получают доступ к редактируемому документу в режиме просмотра. После завершения редактирования и сохранения изменений версия документа становится доступной для редактирования другими пользователями. Функциональность WIKI-модуля обеспечивает сохранение всех версий информационных объектов и отслеживание внесенных изменений.

#### ***Ввод и обработка начального банка данных***

При проведении работ по подбору материалов для заполнения первичного банка данных информационной системы "База знаний в области атомной науки и энергетики" определен список форматов, пригодных для публикации и последующей обработки. К ним относятся текстовые и гипертекстовые документы, электронные таблицы, базы данных, цифровые карты и схемы, а также мультимедийные материалы (фото, аудио и видео ресурсы). Большинство из перечисленных форматов, исключая мультимедийные, позволяют применять функции поиска по контексту. Практически все указанные форматы данных могут быть отображены в современных Web-браузерах, некоторые – при наличии специальных модулей расширения (plug-in extension)

Определен первоначальный массив данных для публикации в базе знаний. К исходным данным относятся:

- Архив выпуска журнала «Вестник НЯЦ». В портальной системе «База знаний по атомной энергетике» созданы информационные карты объектов "журнал" и "статья".
- Архив журналов «Атомная энергия
- Архив статей INIS с 1994-2006 годы. Путём программной обработки создана база данных публикаций и механизмы поиска статей по следующим параметрам
- Архив текущей научно-технической документации по отделам предприятия путём публикации в портальной системе НТНСИ, дочернем портале базы знаний.

Работы по внесению первоначального массива данных в систему и создания интерактивного интерфейса поиска информации с использованием современных web-технологий были выполнены в несколько этапов:

- I. Комплектация первоначального файлового архива из сборников CD-ROM
- II. Разработка приложения-конвертора по приведению данных к единому формату и созданию базы данных публикаций.
- III. Конвертация данных и создание базы данных INIS.
- IV. Создание web-приложения для поиска и визуализации информации. Разработка программных библиотек и интерфейсов.

Произведена публикация журнала «Вестник НЯЦ» на портале база знаний. Библиотека портала базы знаний журналов «Вестник НЯЦ» интегрирована с облаком знаний на портале. Добавлены атрибуты знаний, способствующие упрощению идентификации отдельных компонент (статей) журнала на портале и облегчающих поиск нужных фрагментов.

#### ***Создание системы авторизованного доступа***

Специфика научной отрасли информационной системы "Базы знаний в области атомной науки и энергетики" подразумевает наличие чувствительной информации, доступ к которой должен быть санкционированным и строго авторизованным. Кроме того, применение Web-технологий в пользовательском интерфейсе повышает доступность данных, но в то же время увеличивает риск несанкционированного доступа с возможностью искажения или уничтожения информационных объектов.

Все пользователи системы делятся на 2 большие категории – посетители (анонимные гости системы, не прошедшие процедуру аутентификации) и участники (авторизованные пользователи, однозначно идентифицированные системой). Согласно регламенту доступа к "Базе знаний" посетители не имеют никаких прав на внесение, редактирование и удаление информации в объекты системы, кроме временных переменных сеанса пользователя и открытых разделов форума. Посетители имеют право просмотра разделов и узлов "Базы знаний", содержащих информацию, опубликованную для общего доступа. Участники системы могут быть наделены одной (или несколькими) из ролей, определенных для субъектов "Базы знаний"

- ЧИТАТЕЛЬ – роль авторизованного пользователя системы, дающая право проводить поиск, выборку и чтение материалов, находящихся в открытом и общем авторизованном доступе. Отдельным ЧИТАТЕЛЯМ может быть открыт доступ к некоторым материалам в ограниченном доступе по причине служебной необходимости. Обычно до 80% всех пользователей базы знаний является ЧИТАТЕЛЯМИ.

- АВТОР (РЕДАКТОР) – роль авторизованного пользователя, обладающего правами ЧИТАТЕЛЯ, дополненными возможностью создавать и/или изменять существующие информационные объекты в части дескрипторов (метаданных) документов. Имеют доступ с правом создания и изменения объектов к первым двум уровням данных.
- ЭКСПЕРТ – роль авторизованного пользователя с правами РЕДАКТОРА, имеющего также возможность вносить изменения в содержание документов-первоисточников, в том числе на уровне ограниченного доступа. Как правило, эта роль назначается ведущим научным и административным специалистам организации для обеспечения высокого уровня компетенции. ЭКСПЕРТЫ принимают окончательное решение по принадлежности информационных объектов к какому-либо уровню доступности
- АДМИНИСТРАТОР – роль авторизованного пользователя, позволяющая назначать прочие роли пользователям системы, управлять правами доступа на основании требований и рекомендаций ЭКСПЕРТОВ, контролировать соблюдение политики безопасности системы

Модульная структура информационно-поисковой системы позволяет назначать разные роли в разных разделах для одного и того же участника системы. Это значительно повышает доступность информации и позволяет соблюдать правила санкционированного доступа к ней. Интеграция программной платформы с глобальным каталогом сетевого домена предприятия обеспечивает сквозную аутентификацию пользователей в системе управления знаниями, что исключает возможность несанкционированного доступа к информации лицами, не являющимися сотрудниками предприятия и не авторизованным в корпоративной сети. В то же время процедура сквозной аутентификации повышает удобство использования системы, т.к. не требует дополнительных процедур регистрации для корпоративных пользователей, авторизованных в глобальном каталоге Active Directory предприятия.

#### ***Разработка методики внесения авторской информации через персональные узлы портала "База знаний АЭ".***

В результате исследований технологий накопления и обработки информации, моделирования системы ведения НТНСИ (научно-технической и нормативно-справочной информации) была выявлена низкая эффективность средств электронного документооборота для целей сбора и обработки первичной информации "Базы знаний". В качестве технологии накопления знаний было предложено использовать систему авторских (персональных) узлов специалистов и экспертов из числа сотрудников предприятия. Эта методика близка по смыслу к современной технологии ведения электронных дневников, на которой основаны феномены популярных социальных сетей типа "Живой журнал".

Каждый авторизованный пользователь имеет возможность создания персонального узла на портале системы "База знаний". Персональный узел состоит из трех типов страниц, каждый из которых имеет свой шаблон:

- a. **Страница общего профиля:** Любому пользователю доступна страница общего профиля, которая размещается в шаблоне личного узла.
- b. **Личный сайт:** служит для хранения содержимого каждого пользователя и для упрощения совместной работы с информацией. У каждого персонального узла есть частная домашняя страница, доступная для просмотра только этому пользователю.
- c. **Сайт личной настройки:** владельцами этого сайта являются администраторы семейств сайтов или пользователи, назначенные администратором семейства сайтов администраторами сайтов.

Владелец персонального узла базы знаний имеет возможность организовывать личную информацию посредством программных модулей, а также разграничивать доступ различным категориям пользователей – как группам, так и отдельным сотрудникам. Персональные узлы пользователей обеспечивают авторскую настройку путем интеграции на страницу различных web-частей, для повышения индивидуальности в подходе построения интерфейса страницы для каждого сотрудника предприятия.

Разработка методики внесения авторской информации с помощью персональных узлов сотрудников позволяет перевести корпоративную базу знаний на принципиально иной уровень. Стандартная информационно-поисковая система требует обязательного прохождение информации через рутинные процедуры сбора, формализации, каталогизации и сортировки, что значительно увеличивает срок поступления информации в хранилище. Система сбора сведений через авторские узлы позволяет получать информацию практически в режиме реального времени, причем правила доступа к авторской информации определяется в первую очередь самим автором. Дополнение системы персональных узлов алгоритмами экспертной верификации сведений позволит свести к минимуму риски появления в хранилище некорректной информации и нарушения режима доступа к чувствительной информации. Включение библиотек общих документов персональных узлов в индексы поисковой машины позволяет включать сведения, предназначенные авторами для общего доступа, в результаты поисковых запросов по всей базе знаний.

#### ***Обеспечение защиты информации от потерь и искажений.***

Для реализации алгоритмов и методик защиты данных от потерь и искажений были проведены работы по обеспечению отказоустойчивости информационной системы при влиянии на нее различных факторов: сбои питания, повреждение дисковых массивов, ошибки в разрабатываемом программном обеспечении. Разработана методика резервирования и восстановления информации в случае программных или аппаратных сбоев.

Информационная система "База знаний в области атомной науки и энергетики" построена на программном ядре Microsoft SharePoint Server 2007 и использует в качестве хранилища банка данных СУБД Microsoft SQL Server 2005. Процедуры проверки целостности данных применяются к базам данных web-приложений системы, базам данных конфигурации и базе данных единого входа в систему.

Разработанная сотрудниками отдела ИТ Национального ядерного центра методика включает в себя следующие основные этапы:

- Подготовка к резервному копированию
- Резервное копирование(Backup)
- Подготовка к восстановлению
- Восстановление резервной копии информационной системы.

**Развитие поисковых алгоритмов и интерфейса пользователя.**

В ходе работ по модернизации и развитию программно-технического комплекса проводились изменения дизайна и функциональности пользовательского интерфейса. На основе типовых шаблонов SharePoint Server был создан основной пользовательский интерфейс "Базы знаний АЭ". Интерфейс состоит из следующих компонентов (

Рисунок 2 - Интерфейс пользователя базы знаний):

- Верхняя навигационная панель – содержит ссылки на основные функциональные элементы базы знаний: "Портал INIS", "База специалистов", "Поисковая машина" и т.п.
- Динамическое боковое меню – содержит ссылки на средство управления пользователями и группами, библиотеки документов, дочерние порталы.
- Центральная область служит для отображения представлений, различных элементов представления библиотек и списков. Имеется возможность интеграции web-частей.
- Иерархическая структура базы знаний - древовидная карта порталов со ссылками на соответствующие элементы.



Рисунок 2 - Интерфейс пользователя базы знаний

Интерфейс базы знаний по атомной энергетике основывается на базовых особенностях механизма шаблонов SharePoint. Эта технология построения интерфейса очень удобна для разработчика своими возможностями:

- Возможность применения различных тем, возможность смены цветовой гаммы интерфейсов порталов.
- Возможность позиционирования элементов на страницах с возможностью изменения внешних параметров
- Возможность разграничения прав доступа на просмотр блоков на страницах
- Создание представлений и настраиваемых страниц, как на основе главного шаблона, так и на основе шаблонов изменяемой коллекции.
- Возможность использования базовых элементов навигации по портальной системе.
- Возможность доработки различных тем на основе CSS.

Эффективность работы поисковой системы является приоритетным направлением в развитии информационной системы «Базы знаний в области атомной энергетике». Эффективность поисковой системы определяется несколькими объективными факторами: быстрота работы, релевантность результатов, удобство представления результатов. Проведено изучение механизма работы службы поиска SharePoint и обозначены следующие моменты:

Служба поиска SharePoint Server обеспечивает требуемую поисковую функциональность для средних групп пользователей (от 10 до 100 пользовательских сеансов). По умолчанию SharePoint располагает обработчиками протоколов для любых сайтов и web-узлов. Благодаря поддержке поиска по содержимому узлов можно искать информацию о документах, перечислять данные из сайтов группы и каталога сайтов, а также сведения о пользователях, хранящиеся в базе данных профилей в поставщике общих служб.

Служба поиска располагает фильтрами IFilter для документов Microsoft Office, HTML-, TIFF- и текстовых файлов. TIFF IFilter обеспечивает исследование текстового содержимого сохраненных факсов с использованием технологии OCR (оптическое распознавание символов). Механизм поиска индексирует не только текстовое содержимое, но и свойства, связанные с элементом данных. Свойства могут быть связаны с исходным содержимым документа и, как правило, используются для его более углубленного описания. Индексируя свойства, можно существенно повысить точность поиска по сравнению с полнотекстовым поиском по содержимому. Например, индексация свойств помогает отыскать сотрудников, принадлежащих к определенному подразделению. Язык запросов SharePoint поддерживает полнотекстовые расширения Microsoft SQL Server, которые позволяют вести поиск с логическими условиями и учетом различных форм слов, а также углубленный поиск на основе свойств (Рисунок 3).



Конечные пользователи могут вести простой и расширенный поиск с использованием готового Web-компонента Search.



Рисунок 3 Архитектура службы поиска SharePoint

Поиск документов по категориям организован как элемент общей системы поиска. Для создания данной вариации поиска разработана методика применимая к любым информационным объектам базы знаний. Данная методика включает в себя следующие основные этапы подготовки объекта для системы формализованного поиска:

- Определение степени формализации информационного объекта, и определение необходимости в создании дополнительных атрибутов, либо присвоению существующей категории знания.
- Автоматическое либо пользовательское изменение значений полей информационных карт объекта
- Индексация существующих либо вновь созданных полей объекта базы знаний.

Для повышения релевантности результатов поиска в базе знаний создан и сконфигурирован глоссарий ключевых слов. Ключевые слова и наиболее подходящие ссылки предоставляют пользователям базы знаний две полезные возможности для получения необходимых результатов поиска:

- Ключевые слова позволяют составлять глоссарий основных терминов, используемых в РГП НЯЦ РК. Когда пользователь вводит в запросе на поиск ключевое слово и созданное ранее определение этого ключевого слова появляется в верхней части страницы результатов поиска.
- Наиболее подходящие ссылки позволяют представлять полученные результаты поиска вверху страницы. Наиболее подходящие ссылки являются URL-адресами страниц, документов или внешних web-узлов, связанных с ключевыми словами. При вводе пользователем ключевого слова в запросе на поиск на странице результатов поиска выделяется отображение наиболее подходящих URL-адресов, включающих название и описание каждой ссылки.

Наиболее подходящие ссылки особенно полезны в тех случаях, когда менеджеру по знаниям требуется повышать посещаемость определенных страниц. Поскольку наиболее подходящие URL-адреса отображаются так, чтобы привлечь внимание, конечные пользователи могут в первую очередь посмотреть именно их.

#### Модернизация аппаратного обеспечения системы

Сервер приложений и системы управления базами данных корпоративной информационной системы "База знаний АЭ" является центральным компонентом программно-технического комплекса и обеспечивает выполнение задач накопления, индексирования, поиска и предоставления информации, а также поддержку сервисов авторизации пользователей, мониторинга состояния системы и базового резервного копирования данных.

Системные требования к серверу баз данных и приложений "Базы знаний АЭ" определяются:

- суммарными требованиями по объему оперативной памяти и дискового пространства всех программных компонент, составляющий корпоративную информационную систему "База знаний в области атомной науки и энергетики";
- максимальными требованиями к вычислительной мощности процессора, пропускной способности системной шины и сетевых коммуникаций, предъявляемыми каждым компонентом информационной системы.

Основными компонентами общесистемного и инструментального программного обеспечения в соответствии с решениями, принятыми на этапе моделирования системы и построения рабочего прототипа, являются:

- серверная операционная система Microsoft Windows Server 2008 R2;
- серверная СУБД Microsoft SQL Server 2005/2008;
- Web-ориентированная интеграционная платформа для разработки приложений Microsoft SharePoint Server 2007;
- среда разработки приложений Microsoft Visual Studio 2008;
- инструментальная среда ASP.NET MVC FrameWork для реализации концепции model-view-controller.

В качестве хранилища принято решение использование специализированного дискового массива емкостью 6-8 Тб с автономным процессором и операционной системой, достаточной для установки и эксплуатации

корпоративной СУБД Microsoft SQL Server 2005/2008. Все процедуры, связанные с обслуживанием баз данных корпоративного хранилища, обеспечением защиты данных от программно-аппаратных сбоев, ведением журналов транзакций и проверкой целостности данных, будут выполняться локально на этом дисковом массиве.

В качестве основного сервера информационно-поисковой системы (сервера приложений и контроллера глобального каталога Active Directory предприятия) используется двухпроцессорный сервера с объемом оперативной памяти 8 Гб, поддерживающий 64-битную архитектуру. В задачи этого сервера входит обеспечение полной функциональности системы "База знаний по АЭ", включая предоставление интерфейсов пользователя, реализацию поисковых алгоритмов, индексацию информационных объектов и поддержку интеграционной платформы – портала системы.

#### **Заключение**

В ходе научно-исследовательских работ были рассмотрены современные технологии сохранения и обработки информации в сфере управления знаниями. Построен рабочий прототип информационно-поисковой системы "База знаний в области атомной науки и энергетики". Эта система может стать хорошим заделом будущей корпоративной информационной системы, обеспечивающей качественное и своевременное предоставление сотрудникам различных уровней и подразделений предприятия информации - как операционных, так и аналитических данных. Поскольку информация играет достаточно важную роль в научных и инженерных работах, успешное внедрение и развитие системы "База знаний" поможет в значительной степени повысить эффективность рабочего процесса. Следует заметить, что наличие информационной базы знаний в предметной области является одним из показателей компетенции организации, в том числе ее персонала, в этой области. При условии постоянной актуализации данных в системе, поддержке и развитии ее технической и информационной составляющих, "База знаний АЭ" будет способствовать передаче знаний новым специалистам и таким образом обеспечивать преемственность поколений научных и технических коллективов компании.

#### **Литература**

1. " Проектирование и разработка системы интеграции информационных ресурсов научно-технических, инженерных и административных "/Батырбеков Э.Г., Борисенко А.Н., Цай Е.Е., Уханов С.В., Вестник НЯЦ №1, 2011
2. Inmon W.H. What is Data Warehouse. – N.Y.: John Wiley & Sons, 1995.
3. Сахаров А.А. "Концепции построения и реализации информационных систем, ориентированных на анализ данных." - СУБД, N 4, 1996.- С. 55-70
4. Маннинг К., Рагхаван П., Шютце Х. Введение в информационный поиск. — Вильямс, 2010.-356 с
5. Гробов И.Д., "Разработка Web-портала в ASP.NET 2.0 и SharePoint 2007"/Гробов И.Д. – СПб, БХВ-Петербург, 2008, 656 с., ISBN 978-5-9775-0229-0

УДК 621.039.53

### **СОПРЯЖЕНИЕ ТЯЖЕЛОВОДНОГО ГАЗООХЛАЖДАЕМОГО РЕАКТОРА С ЦИКЛОМ РЕНКИНА**

Котов В.М., Витюк Г.А., Иркимбеков Р.А., Мухаметжарова Р.А  
ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК, г. Курчатов, ВКО, Республика Казахстан.

#### **Введение.**

Схемы тяжеловодных реакторов с газовым теплоносителем были апробированы на первом этапе развития атомной [1, 2]. Малые потери нейтронов в замедлителе и теплоносителе, возможность достижения высоких температур теплоносителя при его малом давлении и независимость давлений в контуре теплоносителя реактора и контуре пара создают предпосылки достижения высоких технических и экономических преимуществ данной схемы. Однако, эти преимущества реализованы не были.

Полный анализ этого явления не входит в рамки данной статьи, но ряд причин следует отметить:

1. Из использования в турбине выпадает энергия, выделяющаяся в замедлителе.
2. Высоки потери энергии на прокачку теплоносителя.
2. Использованы конструкционные материалы вышедшие из работ в последующем.
3. Как правило, проводилась подстройка систем реактора под имеющиеся известные турбоагрегаты.
4. Нейтронно-физические преимущества в значимой мере могут быть реализованы только с использованием тория [3].

По техническим и экономическим характеристикам тяжеловодные реакторы с газовым теплоносителем проиграли более простым в исполнении водо-водяным реакторам [4].

**Постановка задачи.** В ИАЭ НЯЦ РК исследованы возможности газоохлаждаемых реакторов с тяжеловодным замедлителем в достижении высокого коэффициента преобразования тепловой энергии в механическую и обеспечения его безопасной работы. Разработано техническое решение, обеспечивающее высокую эффективность гашения реактивных аварий [5] и определены возможности использования поршневых машин, работающих по циклу Брайтона в режиме высоких расширений рабочего тела с нагревом газового теплоносителя – рабочего тела в реакторе. Показана возможность достижения КПД преобразования тепловой энергии, получаемой теплоносителем, в механическую свыше 50 % при температуре нагрева теплоносителя до 500 °С и использовании отработанных



стержневых твэлов [6]. В такой схеме энергия замедления нейтронов теряется в основной задаче АЭС. Кроме того, мощность единичного агрегата поршневой машины не превышает десятка мегаватт и, что более важно, схема необходимых поршневых машин пока не отработана.

В настоящей работе предлагается схема сопряжения тяжеловодного реактора с газовым теплоносителем с паровым турбоагрегатом цикла Ренкина, основанная на том, что в цикле Ренкина требуемое для работы тепло подается пару не в одном процессе, а в нескольких, причем проходящих в различных интервалах температур. Как и в реакторе [6] максимальная температура нагрева теплоносителя близка к 500 °С.

**Характеристики цикла.** Проведены расчеты различных вариантов циклов, отличающиеся максимальным давлением пара, числом промежуточных ступеней перегрева и характеристик расширения пара в отдельных ступенях турбины. Наиболее экономичный по сложности изготовления вариант представлен в таблице 1. В цикле используется два промежуточных подогрева пара и минимальное общее расширение пара. Достигнута нулевая влажность пара на выходе из турбины, что обеспечивает малые габариты турбины, возможность использования дешевых материалов для изготовления её лопаток и, соответственно, её меньшую стоимость. Кроме турбины в этом варианте имеет малые габариты холодильник, а достаточно высокая температура оживаемого пара обеспечивает возможность использования его тепла для бытовых и хозяйственных нужд.

В близком варианте достигнута сухость пара на выходе из турбины 0.93 против типичного значения для ВВЭР – 0.75. Общее расширение пара в нем в 3.7 больше, и достигается полное КПД 42.4 %. Проблема материала лопаток здесь снята в отличии от турбин атомных электростанций с реакторами ВВЭР или АВВР [7].

Таблица 1.

Параметры пара и воды в цикле с 3 перегревами при Р<sub>макс</sub>=200 ата и Т<sub>макс</sub> 500 °С.  
КПД теор =41.7 %, с учетом потерь на турбине – 38.8 %

№ теп об	Т, °С	Р, ата	Энталь	Доля Q	Энтроп	Уд объ	Сухость
1 холодильник	69,6	0,304	2625,4	-0,583	7,764	<b>5,17</b>	1
	69,3		290,1		0,946		
2 вода от зам	131	10	610,5	0,08	1,645	~0,001	0
					365		
3 вода от ТВС	365	200	1811,5	0,2998	3,99	0,0074	1
					366		
4 вода -пар	366	200	2423,1	0,1527	4,95	0,0074	1
					500		
5 1 перегрев	500	45	3241,2	0,1436	6,1446	0,0148	1
					275,3	2865,3	
6 2 перегрев	500	45	3440,4	0,1436	7,0323	0,076	1
					275,9	2999,9	
7 3 перегрев	500	10	3479,1	0,1196	7,764	0,354	1
					275,9	2999,9	

**Схема реакторной установки.** Было рассмотрено несколько вариантов технологических схем связи реактора с паровым контуром. Один из них, соответствующий циклу по таблице 1, представлен на рисунке 1. Отличиями данной схемы от ряда других решений являются: включение теплоты замедления нейтронов в работу цикла Ренкина для нагрева воды, разделение контура теплоносителя на четыре тракта, обеспечивающих энергией подогреватель и испаритель воды, отдельные перегреватели пара. Тракт нагрева и испарения воды может быть выполнен водным.

Передача энергии замедления нейтронов воде цикла Ренкина осуществляется за счет корпусного исполнения реактора с давлением в корпусе большим атмосферного, но меньшим максимального давления в контуре теплоносителя, что позволяет согласовать температурные режимы внешнего теплообменника и снизить толщину стенок каналов.

Разделение трактов перегревателей позволяет снизить опасность разгерметизации парового контура высокого давления. В данном решении меры по предотвращению последствий такой разгерметизации будут приниматься к тракту, в котором выделяется небольшая часть мощности реактора (~20 %). Кроме этого, такое разделение оптимизирует затраты энергии на прокачку теплоносителя за счет согласования перепадов температур в соответствующих внешних теплообменниках.

**Описание реактора.** Расчет нейтронно-физических и теплофизических характеристик реактора проводился с помощью программ [8, 9], характеристик кампании по программе [10], характеристик цикла Ренкина и турбины по [11,12].

Проработаны эскизные варианты реактора с тепловой мощностью 80 МВт. Вариант с комплектом ТВС с газовым и водным теплоносителями представлен на рисунке 2.

В реакторе 85 ТВС, которые установлены в узлах треугольной решетки с шагом 18 см. Активная зона окружена двухслойным отражателем. Ближний к зоне слой состоит из тяжелой воды, а дальний слой состоит из графита. В варианте со смешанным теплоносителем водные ТВС установлены в центральной части активной зоны.

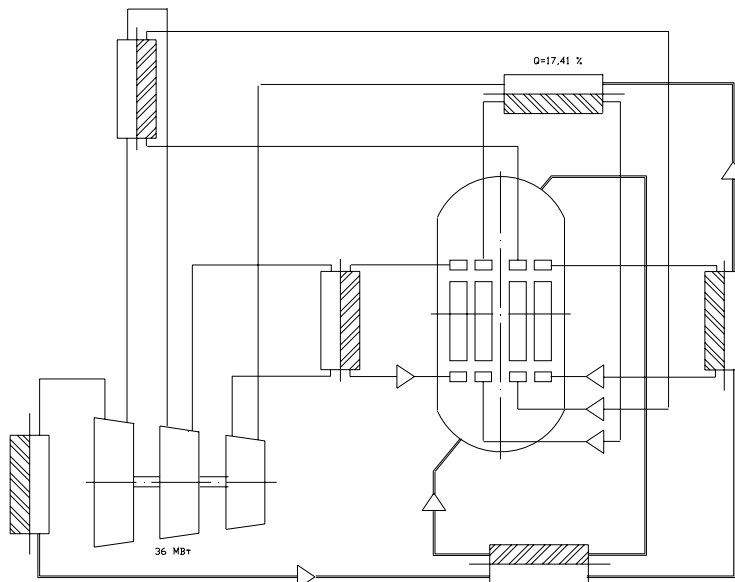


Рисунок 1. Реактор с высокотемпературным газовым и низкотемпературным водным теплоносителями.

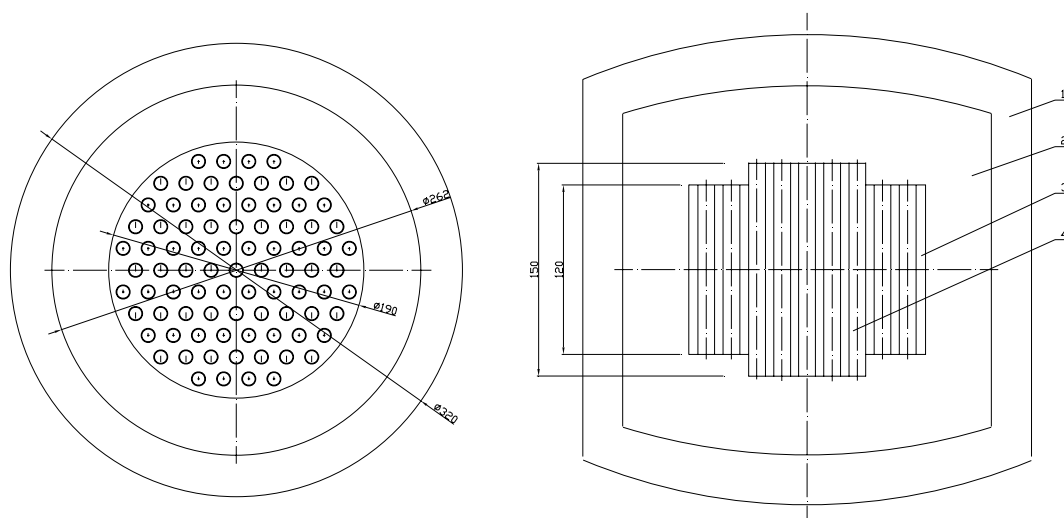


Рисунок 2. Вариант реактора с газовым и водным теплоносителями. 1 – графитовый слой отражателя, 2 – тяжелая вода, 3 – ТВС с газовым теплоносителем, 4 – ТВС с водным теплоносителем.

**Конструкция ТВС.** В каждой ТВС установлено 59 твэлов с внешним диаметром 6 мм. Расположение твэлов в сечении ТВС показано на рисунке 3. Пространство теплоносителя ограничено экраном - тонкой стенкой из циркониевого сплава (толщина 1 мм), а силовой корпус из такого же сплава отстоит от экрана на 2 мм и имеет толщину 3 мм. Пространство между экраном и силовым корпусом заполнено двуокисью углерода. Давление в полости между экраном и силовым корпусом равно среднему давлению рабочего тела по высоте канала. Рассмотрены варианты с топливом на основе урана и смеси уран и тория, в виде металлов, оксидов и нитридов этих металлов.

Варьировался вид газового теплоносителя в ТВС (водород, гелий, двуокись углерода).

В качестве рабочего варианта топлива выбрано топливо на основе металлических урана и тория. В каждом твэле элементы сердечника содержащие уран чередуются по высоте с элементами содержащими торий. Начальное содержание  $^{235}\text{U}$  в урановых элементах равно 0.5 %. Начальное содержание  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$  в урановых элементах, а также начальное содержание  $^{233}\text{U}$  в ториевых элементах равны их равновесному содержанию в длительной кампании.

Такая концепция твэла обеспечивает высокой постоянство энерговыделения, как во времени, так и по его высоте в ходе кампании с замкнутым циклом, а также высокий уровень выгорания [13].

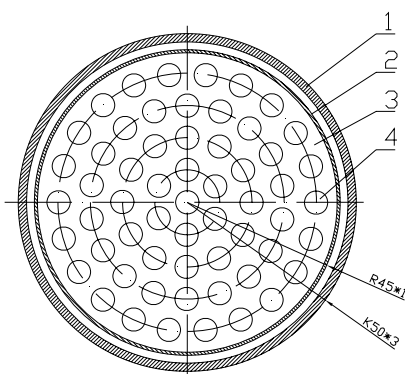


Рисунок 3. Схема ТВС реактора. 1 – силовой корпус, 2 – теплоизоляционный чехол, 3 – теплоноситель, 4 – твэл.

**Конструкция твэла.** Сердечник твэла выполняется составным из нескольких лепестков, как это показано на рисунке 4. Лепестки из урана или тория занимают 80 % объема под оболочкой твэла. Остальные 20 % заполнены жидким (при рабочих температурах) металлом, например, свинцом или висмутом. В верхней части твэла имеется пространство для сбора газообразных продуктов деления и жидкого металла при его вытеснении из рабочего пространства.

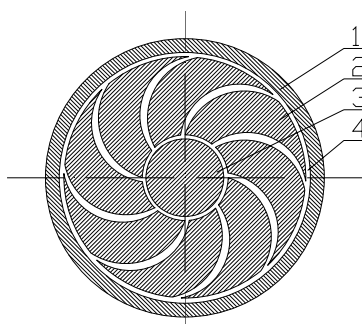


Рисунок 4. Конструкция твэла с металлическим составным сердечником. 1 – оболочка твэла, 2 – основные лепестки сердечника, 3 – центральный стержень, 4 – жидкий металл.

Такая конструкция, помимо улучшения теплопередачи от сердечника к оболочке [14], и возможности изменения формы металлической основы топлива без нарушения его целостности, упрощает переработку отработавшего топлива и способствует уменьшению распухания за счет снижения диффузионного барьера для выхода газообразных продуктов деления. На приведенном варианте максимальное расстояние для миграции осколков деления снижено на порядок, относительно аналогов из цельных таблеток, увеличена поверхность для их выхода.

**Теплофизические характеристики.**

Характеристики ТВС с водородным теплоносителем представлены в таблице 2. Характеристики ТВС с гелиевым теплоносителем незначительно хуже.

Таблица 2.

Теплофизические характеристики ТВС реактора с газовым теплоносителем.

Теплоноситель	Н <sub>2</sub>			
	СО <sub>2</sub>			
Среда в зазоре канала ТВС	3	2	1	нагрев воды
Назначение ТВС	перегрев	перегрев	перегрев	
Температура на входе в ТВС, °С	285.9	285.3	376	141
Температура на выходе из ТВС, °С	510	510	510	375
Число ТВС в реакторе	10	12	17	46
Расход теплоносителя в ТВС, кг/с	0.286	0.285	0.478	0.274
Скорость теплоносителя на входе в ТВС, м/с	28.8	28.6	55.36	20
Скорость теплоносителя на выходе из ТВС, м/с	40.1	40	67.35	31.5
Перепад давления по высоте ТВС, Па	3892	3882	9617	2923
Мощность на прокачку теплоносителя в ТВС, кВт	5.24	6.25	36.8	17.34

Суммарная мощность прокачки, кВт / % от мех	65.63/		
Т макс на поверхности оболочки твэлов, К	1178	1031	1086
Т макс сердечника твэлов, К	1398	1252	1308
Т макс газа в зазоре ТВС, К	610	609	661
Т макс экрана ТВС, К	637		693
Т макс силового корпуса ТВС, К	455	454	475
		441	

### Характеристики кампании

Изменение реактивности в ходе двух вариантов кампании (без перестановок топлива и с одной перестановкой) представлено на рисунке 5. При поддержании постоянным потока нейтронов в активной зоне отношение мощности реактора в начале кампании к мощности в конце кампании в варианте без промежуточных перестановок равно 37,6 %, а с одной перестановкой – 17.6 %. Выгорание топлива в данной кампании составляет 5,1 % или 48,7 МВт\*сут/кг.

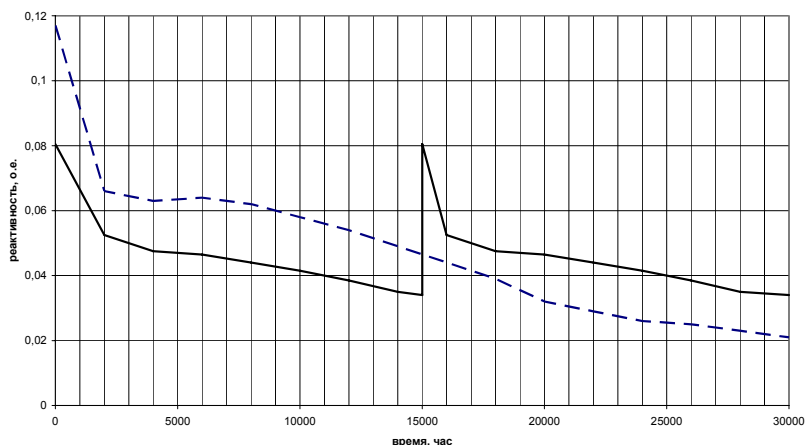


Рисунок 5. Изменения относительной мощности и реактивности в ходе кампании длительностью 30000 часов без перестановок топлива и с одной промежуточной перестановкой.

Урановые таблетки первой кампании выполняют из природного урана с добавкой в них 0,357 % <sup>239</sup>Pu и 0,12 % <sup>241</sup>Pu. Допустимо близкое количество иной смеси этих изотопов. В ториевых таблетках к торию добавляют 2.3 % <sup>235</sup>U возможно большего обогащения.

При переработке отработавшего топлива из урановых таблеток извлекают плутоний, а остатки урана заменяют на природный уран. Из ториевых таблеток удаляют продукты деления и добавляют к ним торий в количестве равном по массе извлеченным продуктам деления. Использование природного урана в топливном цикле достигает 5 %.

В активной зоне находится 2312 кг топлива. Требуемая годовая производительность переработки отработавшего топлива составляет 680 кг. Потребная масса годовой поставки сырья составляет 510 кг природного урана и 14 кг тория. Для сравнения, годовая потребность реактора ВВЭР-1000 в уране на единицу мощности в десять раз больше, а относительное количество рассеиваемой тепловой энергии больше в 1.4 раза.

### Заключение

На основе технических решений, обеспечивающих полное использование энергии, выделяющейся в тяжеловодном реакторе, решений обеспечивающих снижение гидравлических потерь на прокачку теплоносителя разработаны основы тяжеловодного газоохлаждаемого реактора с КПД более 40 % при нагреве теплоносителя около 500 °С с использованием стержневых твэлов диаметром 6 мм.

Предложен цикл Ренкина с максимальным давлением 20,0 МПа с тремя перегревами пара, обеспечивающий на выходе из турбины низкую влажность пара, вплоть до нулевой. Использование такого цикла позволит сократить стоимость турбины, конденсатора и увеличить возможность использования низкотемпературного тепла.

Показана работоспособность циркониевых сплавов в элементах ТВС такого реактора.

Предложена конструкция твэла с металлическим сердечником, обеспечивающая достижение высокого выгорания, малые затраты топлива в активной зоне. В варианте уран-ториевого топлива использование природного урана достигает 5 % в реакторе мощностью 80 МВт, имеющем малые габариты.

### Литература

1. Gas-cooled power reactors. Directory of Nuclear Reactors. Vol. VII. International Atomic Energy Agency. Vienna, 1968. p.243-302.
2. Абрамов В.М., Зеленский В.Ф., Козак М. и др. Первая чехословацкая атомная электростанция А-1 с тяжеловодным реактором КС-150 (разработка и конструкция). Атомная энергия, 1974, т. 36, вып. 2, с 113-124.
3. Котов В.М., Котов С.В. Воспроизводство делящихся веществ в тепловых реакторах. // Атомная энергия. 2007 г. Т. 103, вып. 5, с. 327-329.
4. Ринейский А.А. Сопоставление технико-экономических характеристик АЭС с современными тепловыми и быстрыми реакторами. - Атомная энергия, 1982, т. 53, вып. 6, с. 360-367.
5. Котов В.М. Газоохлаждаемый реактор с водным замедлителем и способ управления его работой. Инновационный патент Республики Казахстан № 23234 от 20 сентября 2010 г.

6. Котов В.М., Зеленский Д.И. Газоохлаждаемый реактор с высоким коэффициентом полезного действия. Межотраслевая межрегиональная научно-техническая конференция "Перспектива развития атомных станций малой мощности в регионах, не имеющих централизованного электроснабжения". Москва, 11-12 ноября 2010 г.
7. Udo Zirn, Motonari Haraguchi. Hitachi turbine generator technology for nuclear applications. www.hitachipowersystems.us.
8. Fluent version 6.3.26 User Reference; Fluent, Inc.; 2006
9. MCNP/5: General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5, 2003.
10. В.М. Котов, Р.А. Иркимбеков. Расчет характеристик кампании энергетических реакторов. // Вестник НЯЦ РК. – Курчатова, 2011. – вып. 3. – С. 118 – 122.
11. Иванов М.Ю. Теплофизические свойства воды и водяного пара. Программный код Parvo 95. Версия 3.3. 2004 г.// <http://fortraner.narod.ru/index.htm>
12. Васяев А.В., Кодочигов Н.Г., Рулев В.М. и др. Обоснование параметров и схемно-конструктивных решений блока преобразования энергии с газотурбинным циклом в составе АЭС с ВТГР. - Атомная энергия, 2005, т. 98, вып. 1, с. 24-36.
13. Котов В.М. Твэл с уран-ториевым топливом. Инновационный патент Республики Казахстан № 23235 от 20 сентября 2010 г.
14. Габараев В.А., Филин А.И. Разработка АЭС с РУ БРЕСТ-ОД-300 с пристанционным топливным циклом для площадки Белоярской АЭС. Международная научно-практическая конференция "Атомная энергетика и топливные циклы". Москва-Димитровград, 1-5 декабря 2003 г.

## ТЕРМИЧЕСКАЯ ПОЛЗУЧЕСТЬ ОБЛУЧЕННОЙ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ

Г.З. Ганеев, С.Б. Кислицин

*Институт ядерной физики Национального ядерного центра РК, г. Алматы, Казахстан*

Получены зависимости скорости ползучести, обусловленной сеткой дислокаций и скорости ползучести с учётом вклада петель от времени. Проведены расчеты скорости ползучести в условиях пострадиационного термического старения, с учётом перестройки ансамблей дефектов, а также расчеты изменения формы шестигранной оболочки ТВС за счет ползучести и возникающих при этом напряжений.

**Введение.** В расчётах предполагается, что краевые дислокации с вектором Бюргерса, параллельным приложенному одноосному напряжению, являются менее мощным стоком для вакансий, чем дислокации с вектором Бюргерса, нормальным к приложенному напряжению. При расчётах учитывалась деформация распределения петель и пор от времени, которые определяют скорость деформации, а также термически-равновесная концентрация вакансий, и генерация междоузельных атомов, обусловленная коалесценцией пор.

**Ползучесть облученных конструкционных сталей при длительном хранении.** Для определения скорости ползучести  $\varepsilon_t$  при одноосном напряжении  $\sigma_x$  была рассмотрена сетка дислокаций плотности  $\rho$ . Изотропное распределение вектора  $b$  по направлениям, определяет число упорядоченных дислокаций (вектор  $b$  параллелен приложенному напряжению  $\sigma_x$ )  $\sigma_a=1/3\rho$ , и, соответственно, неупорядоченных  $\rho_n=2/3\rho$ , с вектором Бюргерса  $b$  – нормальным приложенному напряжению  $\sigma_x$ . Возникает диффузионный поток вакансий от упорядоченных дислокаций к неупорядоченным, который определяет скорость переползания  $v$ :

$$v=(D_v C_v + D_i C_i) / b \cdot \{ \exp(2 \cdot \sigma_x \cdot \omega / kT) - 1 \}, \quad (1)$$

где  $D_v, D_i$  – коэффициенты диффузии вакансий, междоузлий;  $C_v, C_i$  – концентрация вакансий, междоузлий;  $b$  – вектор Бюргерса,  $\omega$  – атомный объём.

Именно эта составляющая общего потока (другая часть потока вакансий, приводящая к аннигиляции дислокаций, в силу изотропной симметрии не приводит к ползучести) обуславливает скорость ползучести  $\varepsilon_t$ :

$$\varepsilon_t = (1/3) \rho (D_v C_v + D_i C_i) \cdot \{ \exp(2 \cdot \sigma_x \cdot \omega / kT) - 1 \}, \quad (2)$$

Скорость ползучести, обусловленная только ростом упорядоченных петель, определится соотношением:

$$\varepsilon_t = (1/3) C_L \cdot 2 \cdot \pi \cdot r_a (D_v C_v + D_i C_i) \cdot \{ \exp(2 \cdot \sigma_x \cdot \omega / kT) - 1 \}, \quad (3)$$

На рисунке 1 дана зависимость скорости ползучести  $\varepsilon_t$  год<sup>-1</sup> от времени  $t$ , (год) с учётом вклада петель. При расчётах нами были использованы зависимости плотности сетки дислокаций и радиуса петель Франка от времени, полученные в работе [1]. Следует отметить, что порядок величины скорости ползучести сопоставим с экспериментальными данными. Значения параметров используемых в расчётах [2]:  $\mu=7,94e4$  МПа;  $b=2,5e-10$  м;  $\omega=1,1e-29$  м<sup>3</sup>;  $\sigma_x=2$  МПа;  $T=573$  К;  $\rho_0=1e13$  м<sup>-2</sup>;  $r_s=50e-10$  м;  $D_v=1,4e-6 \exp(-1,48эв/kT)$  м<sup>2</sup>с<sup>-1</sup>;  $D_i=8e-7 \exp(-0,15эв/kT)$  м<sup>2</sup>с<sup>-1</sup>;  $C_v=4,48 \exp(-1,6эв/kT)$ ;  $C_i=5 \exp(-4,08эв/kT)$ ,  $C_L=5e20$  м.<sup>-3</sup>;  $\gamma_{sf}=0,1$  Дж м<sup>-2</sup>;  $r_0=1,748e-10$  м;  $r_s=50e-10$  м.

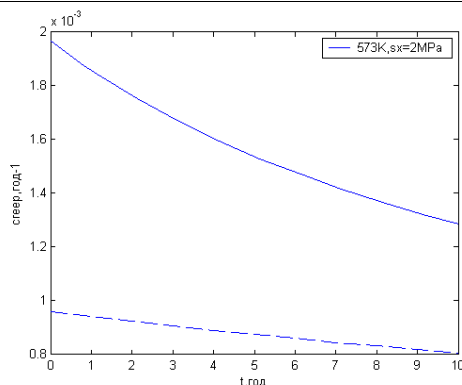
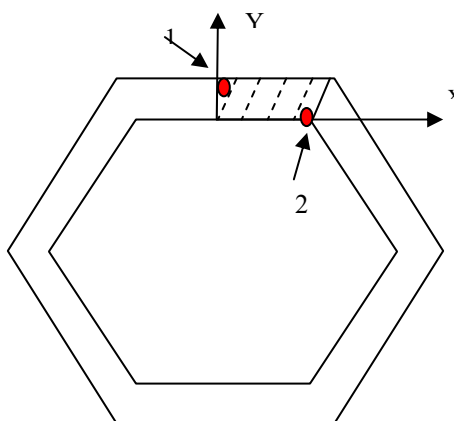


Рисунок 1. (—): зависимость скорости ползучести, обусловленная сеткой дислокаций, от времени; (---): зависимость скорости ползучести, обусловленная сеткой дислокаций и петлями Франка.

**Ползучесть ТВС - оболочки в процессе сухого хранения.** Известно, что изменение геометрии шестигранной оболочки ТВС определяется механизмом ползучести и возникающим напряжением. На рисунке (2) представлена анализируемая область (нормальное сечение шестигранной трубы), обусловленная симметрией задачи. Даны реальные размеры: толщина – 2 мм, ширина – 27 мм; с внутренней стороны приложено давление  $P=0,5$  атм; температура  $T=673K$ ;  $E=2e5H/mm^2$  – модуль Юнга;  $\nu=0,33$  – коэффициент Пуассона; смещение левой и правой грани в направлении нормали к поверхности равно нулю (обусловлено симметрией задачи).



1 – максимальное смещение, 2 – максимальное критическое напряжение.

Рисунок 2 – Сечение шестигранного чехла ТВС и анализируемая (штрихованная) область в декартовой системе координат

Рассмотрение велось в приближении плоско-деформационной задачи теории упругости ( $x, y$  – плоскость). Тензор упругих напряжений определялся соотношением:

$$\sigma = A(\epsilon_t - \epsilon^c), \quad (4)$$

где  $A$  - матрица линейной теории упругости, связывающая компоненты тензора упругих напряжений и тензора упругих деформаций;  $\epsilon_t$  - тензор полной деформации. При отсутствии облучения (сухое хранение, термическая ползучесть) использовались экспериментальные константы, полученные для одноосной скорости ползучести  $\epsilon_{zz,t}^c$  [3]:

$$\epsilon_{zz,t}^c = k \cdot \sigma_{zz}^n f(T), \quad (5)$$

Для хромоникелевой стали, 12X18Н 10Т, облучённой до дозы порядка 50 сна, экспериментальное значение скорости ползучести  $\epsilon_{zz,t}^c = 3,39e-8 \text{ мин}^{-1}$  при одноосной нагрузке 166 МПа при температуре  $T=623K$ . В предположении, что скорость зависит линейно от нагрузки (отсутствие экспериментальной зависимости от напряжения) данные результаты представлены в тензорном виде: для сложно-напряженного состояния, соответствующее тензорное соотношение примет вид:

$$\epsilon_{,t}^c = (3/2) \cdot 3,39e - 8 \cdot \sigma^d, \quad (6)$$

где  $\epsilon_{,t}^c$  – тензор скорости ползучести (индекс после запятой означает производную по соответствующей компоненте);  $\sigma^d$  – девиатор тензора упругих напряжений. Данное соотношение позволяет решать задачи иной геометрии. Рассмотрение велось в двух геометриях - цилиндрическое приближение и корректное - шестигранное сечение. Давление на оболочку создаётся в контакте с ТВЭЛом и среднее значение давления не превышает 1ат. На рисунке 3 представлена зависимость эффективного напряжения  $S_m$  в т.2 (МПа) (см. рисунок 1) от времени  $t$ ; и соответствующая зависимость для цилиндрической геометрии. Наблюдается значительное различие. Но, в рамках ожидаемых давлений напряжения не превышают предела прочности. Здесь и далее, полученные результаты для цилиндрической геометрии при размерах соответствующих оболочке ТВЭЛа, позволяют заключить, что он выдержит длительное хранение; такой же вывод из полученной зависимости можно сделать для оболочки ТВС.

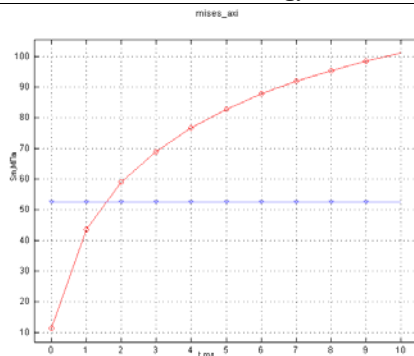


Рисунок 3. Зависимость эффективного напряжения  $S_m$  в т.2 (МПа) от времени  $t$  (год) ; давления -1 ат., хромоникелевая сталь,  $T=673K$ , (o); та же зависимость ползучести для среднего радиуса в цилиндрическом приближении, ( $\Delta$ ), давление 20ат.

**Выводы:**

Разработана модель для определения скорости ползучести, учитывающая эволюцию дислокационной структуры материала. На основе модели проведены расчеты деформации и напряжений чехла ТВС в условиях длительного хранения. Расчетные результаты согласуются с экспериментальными данными, полученными в ходе испытаний на ползучесть стали 12X18H10T – материала чехлов отработанных ТВС реактора БН-350

**Литература:**

- 1 Ганеев Г.З., Кислицин С.Б. Пострадиационная эволюция дефектной структуры нержавеющей стали. // Тезисы 8-й Международ. конф. «Ядерная и радиационная физика». Алматы, Казахстан. – 2011. – С.389.
- 2 J. Nagakawa, H. Shiraishi, H. Kamitsubo ‘ Irradiation creep of 20% cold worked 316 stainless steel under low proton flux’, J. Nuclear Mater., 136 (1985) 238-249.
- 3 Н.Н. Малинин «Прикладная теория пластичности и ползучести», Москва, «Машиностроение», 1975г. стр.399.

УДК 620.191: 621.386.8

**ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ С МОЗАИЧНОЙ СТРУКТУРОЙ ПОВЕРХНОСТИ ДО И ПОСЛЕ ТЕРМОВАКУУМНОГО ОТЖИГА**

Ахметов К.М.\*, Болатханкызы Д., Глазман В.Б., Елеуов М.А., Киккарин С.М., Рақыметов Б.А.,  
Рябкин Ю.А., Токмолдин С.Ж., Тыныштыкбаев К.Б.

*Физико-технический институт МОН РК, г.Алматы, Казахстан*

*\* Институт ядерной физики НЯЦ РК, г.Алматы, Казахстан*

В настоящее время большое количество работ посвящено изучению фотолюминесцентных (ФЛ) свойств пористого кремния (ПК), перспективного для практического применения, например, в качестве светодиодов. ПК включает в себя нанокристаллиты (НК) в виде нанонитей или наностолбов на поверхности монокристаллического кремния, имеющие различные формы кристаллического  $\beta$ -Si и аморфного  $\alpha$ -Si, кремния, покрытые гидридными  $SiH_x$  и оксидными  $SiO_y$  связями. Природа светоизлучающих центров ФЛ до сих пор окончательно не установлена и для объяснения ее предлагаются различные модели [1]. Одной из наиболее ранних и широкоиспользуемых моделей ФЛ является квантоворазмерная модель, в которой ФЛ определяется рекомбинационными уровнями экситонов в кремниевых нанокристаллитах (НК). Другая модель предполагает, что люминесценция обусловлена Si-H связями на поверхности НК ПК. Также существует модель ФЛ из-за наличия дефектных излучающих центров в  $SiO_2$  границ  $Si/SiO_2$  НК ПК. Наиболее общепринятыми моделями объяснения максимума интенсивности излучения при  $\lambda_{max} = 640$  nm являются светоизлучающие центры, связанные с дефектными уровнями сложных гидридов и оксидов поверхности нанокристаллитов (НК), типа  $SiH_x$  или  $SiO_y$  ( $x, y = 1-4$ ). Максимум интенсивности ФЛ при  $\lambda_{max} = 440$  nm объясняется излучательной рекомбинацией экситонов в кремниевых НК [2].

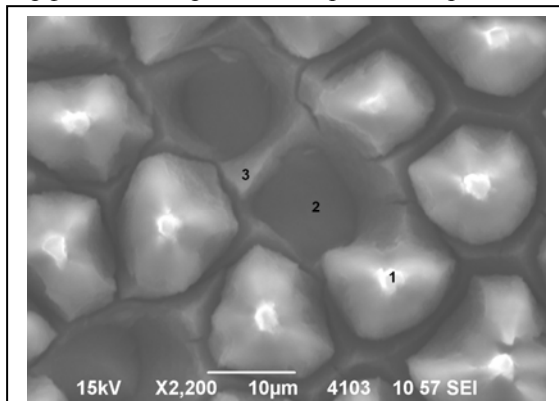


Рис.1. Электронно-микроскопический снимок поверхности образца ПК, протравленного в электролите HF (49%) :H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%),  $t_{\text{травл.}} = 4$  часа.



Данная работа посвящена изучению ФЛ и природы светоизлучающих центров в пористом кремнии, полученном при анодном травлении в электролите с внутренним источником тока. В ней приводятся спектры ФЛ образцов ПК с мозаичной структурой (МС) его поверхности [3] в виде островков окисленных кремниевых (НК), разделенных кремниевыми выступами, до и после отжига на воздухе и в вакууме. Образцы ПК с МС поверхности получались при длительном анодном травлении p-Si (100) в электролитах HF (49%) : H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%) и HF (49%) : H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%) : H<sub>2</sub>C<sub>5</sub>OH с внутренним источником тока, время травления составляло 4 часа. Возбуждение ФЛ осуществлялось He-Cd лазером на длине волны  $\lambda_{exc}=325$  nm с мощностью излучения 15 мВт, сфокусированного на поверхности образца пятном диаметром 1,0 мм. Термический отжиг свежетравленных образцов ПК проводился как на воздухе, так и в контролируемых условиях вакуума 10<sup>-4</sup> Тор (напылительная установка ARC 2000) в температурном интервале (50 - 500)°C с шагом 50°.

Обнаружено, что ФЛ наблюдается при комнатной температуре в виде красно-оранжевого свечения в месте падения возбуждающего лазерного излучения на островках НК ПК (1), в то время как кремниевые участки, т.е., свободные от островков ячейки (2) и выступы (3) (рис.1) не проявляют светоизлучающих свойств. Островки НК ПК представляют собой ансамбль скоплений окисленных НК Si с размерами порядка 10-20 nm [4], а свободные от островков ячейки и разделяющие их выступы представляют собой чистые кремниевые поверхности [3].

Сравнительный анализ спектров ФЛ образцов ПК, отожженных на воздухе (рис.2) и в вакууме (рис.3), показывает существенное влияние условий отжига на параметры ФЛ. Видно, что спектры ФЛ, снятые при этих условиях, имеют как общие черты, так и существенные различия.

Спектры ФЛ свежеприготовленных образцов ПК, снятые при комнатной температуре, представляют собой широкую полосу и имеют две характерные области максимальной интенсивности светоизлучения на длинах волн  $\lambda_{max}$

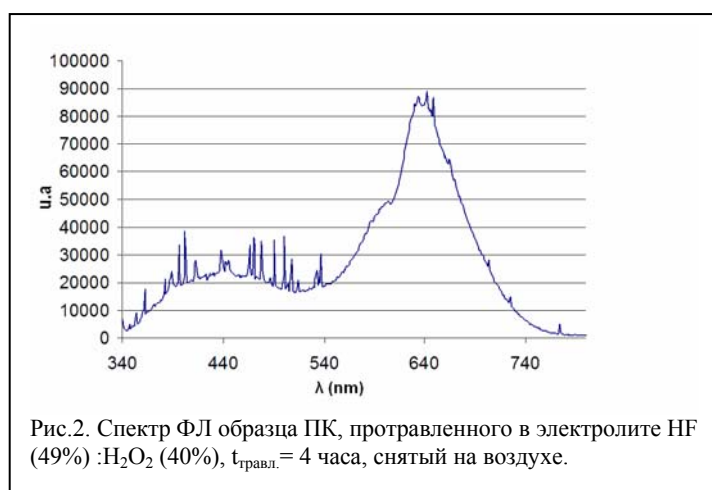


Рис.2. Спектр ФЛ образца ПК, протравленного в электролите HF (49%) :H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (40%), t<sub>травл.</sub> = 4 часа, снятый на воздухе.

$=640$  nm и  $\lambda_{max} = 440$  nm (рис.2). Доминирующий длинноволновый максимум спектра ФЛ при  $\lambda_{max} = 640$  nm обычно связывается с рекомбинацией носителей зарядов на дефектных центрах поверхностных гидридных и оксидных покрытий НК, в то время как коротковолновый максимум ФЛ при  $\lambda_{max} = 440$  nm обусловлен рекомбинацией экситонов в самих НК.

В нашем случае, в длинноволновой части спектров, снятых как на воздухе, так и в вакууме, на коротковолновом их крыле, в области  $\lambda = 600$  nm, наблюдается перегиб. Это свидетельствует о наличии двух различных светоизлучающих центров, суперпозиция спектров которых и дает перегиб. Можно предположить, что данный светоизлучающий центр, ответственный за перегиб в области  $\lambda = 600$  nm, связан с наличием

углеродсодержащих кремниевых комплексов [5]. Наличие углерода в образцах ПК объясняется адсорбцией углеродсодержащих молекул из воздуха, что подтверждается нашими результатами элементного анализа [3]. Характер коротковолновой части спектра ФЛ при  $\lambda_{max} = 440$  nm совпадает с известными литературными данными.

Для более полного понимания природы излучательных центров ФЛ проведен термический отжиг образцов ПК на воздухе и в контролируемых условиях вакуума 10<sup>-4</sup> Тор, который представляет собой продукты реакции травления и адсорбции из окружающей среды, а также возможна трансформация их структур [5].

Термический отжиг свежетравленных образцов ПК показал, что максимум интенсивности ФЛ на длине волны  $\lambda_{max} = 640$  nm наблюдается при отжиге 100°C как на воздухе, так и в вакууме (рис. 3, 4). Увеличение интенсивности ФЛ при T<sub>отж</sub> = 100 – 150 °C обычно связывается с термодесорбцией молекул воды в этом температурном интервале [6, 7]. При этом в обоих случаях наблюдается уширение длинноволнового крыла спектра ФЛ за счет сдвига длины волны максимума излучения и роста сигнала ФЛ в низкоэнергетической части спектра, в то время как его коротковолновая сторона практически не изменяется. Данный экспериментальный факт отличается от ранее приведенных результатов по исследованию природы излучающих центров, когда наблюдается либо уширение высокоэнергетического крыла спектра ФЛ со сдвигом максимума интенсивности излучения [8], либо уширение низкоэнергетического крыла спектра ФЛ со сдвигом максимума интенсивности излучения, но при спаде интенсивности ФЛ [9]. Обычно согласно квантово-размерной модели максимум ФЛ сдвигается в высокоэнергетическую сторону в результате уменьшения размеров НК. Уширение в нашем случае

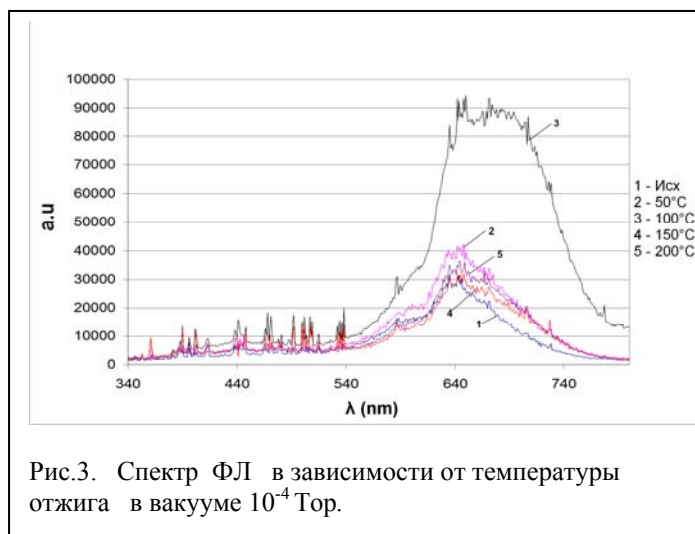


Рис.3. Спектр ФЛ в зависимости от температуры отжига в вакууме 10<sup>-4</sup> Тор.

низкоэнергетического крыла спектра ФЛ мы объясняем увеличением размеров НК за счет усиления дополнительных процессов гидрирования и окисления поверхности НК при или после термодесорбции воды. При этом возможна реконструкция на поверхности НК набора гидридных  $\text{SiH}_y$  ( $y = 1 - 3$ ) и оксидных  $\text{SiO}_x$  комплексов в более сложные образования различных размеров. Низкоэнергетический максимум спектра ФЛ наших образцов определяется излучательной рекомбинацией в некантово-размерных кристаллитах ПК [10], что объясняется флуктуациями потенциала на сильно развитой поверхности НК ПК, приводящих к локализации носителей заряда. В нашем случае значительное увеличение интенсивности низкоэнергетического максимума ФЛ по сравнению с высокоэнергетическим максимумом спектра определяется размерами НК ПК, которые в основном порядка 10 -20 нм.

Следует отметить следующий интересный экспериментальный результат, когда небольшое повышение температуры отжига в вакууме на  $50^\circ\text{C}$  до  $T_{\text{отж}}=150^\circ\text{C}$  уменьшает максимум интенсивности в исходное состояние и возвращает исходную форму длинноволновой части спектра (рис.3 и 4).

Восстановление величины интенсивности и формы линии ФЛ с максимумом при  $\lambda_{\text{max}}=640\text{ nm}$  при столь незначительных изменениях температуры отжига позволяет считать, что необратимых структурных изменений объема НК не происходит, а меняется только структура поверхности. Т.е., при этой температуре отжига происходит разложение поверхностного покрытия без заметного изменения химического и структурного состояния непосредственно поверхности НК ПК.

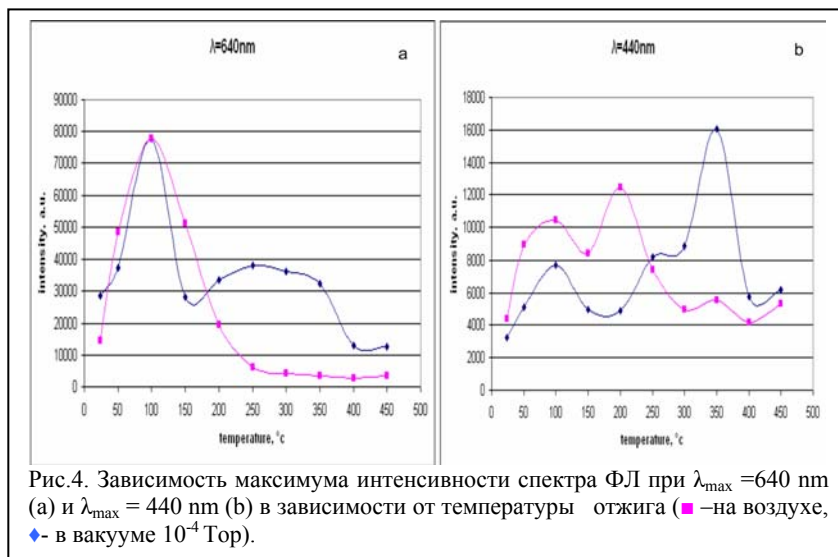


Рис.4. Зависимость максимума интенсивности спектра ФЛ при  $\lambda_{\text{max}}=640\text{ nm}$  (a) и  $\lambda_{\text{max}}=440\text{ nm}$  (b) в зависимости от температуры отжига (■ – на воздухе, ◆ – в вакууме  $10^{-4}\text{ Torr}$ ).

Это подтверждается тем фактом, что уменьшение интенсивности ФЛ происходит без существенного изменения формы спектра. Все это свидетельствует лишь о трансформации химической связи и структуры поверхностных гидридных, оксидных комплексов или силоксанов, типа  $\text{Si}_6\text{O}_3\text{H}_6$ . Т.е., в результате десорбции молекул воды с поверхности НК ПК происходит трансформация сложных комплексов при хемосорбции H и O, и снижение при этом интенсивности ФЛ за счет экранирования излучающих центров этими комплексами.

В случае отжига при  $T_{\text{отж}}=150^\circ\text{C}$  на воздухе максимум интенсивности уменьшается в меньшей степени (рис.4a), чем при отжиге в вакууме, сохраняя при этом исходную форму спектра до отжига.

Тот факт, что при отжиге на воздухе максимум интенсивности спектра ФЛ уменьшается в меньшей степени, чем в случае отжига в вакууме, объясняется возможным образованием дополнительных сложных комплексов с участием окислов. При этом возможно, что они либо слабее экранируют излучающие центры по сравнению с комплексами, образующимися в вакууме, либо в этих комплексах образовались дополнительные дефектные излучающие центры.

Из рисунка 4a следует, что при дальнейшем увеличении  $T_{\text{отж}}$  на воздухе интенсивность ФЛ монотонно падает до  $T_{\text{отж}}=250^\circ\text{C}$  и в интервале  $T_{\text{отж}}=300 - 450^\circ\text{C}$  ее интенсивность становится минимальной и практически не меняется, и исчезает при  $T_{\text{отж}}=500^\circ\text{C}$ . Этот известный экспериментальный факт уменьшения и исчезновения сигнала ФЛ при отжиге в интервале  $T_{\text{отж}}=250 - 500^\circ\text{C}$  объясняется образованием устойчивого слоя поверхностных оксидов, который может либо экранировать излучающие центры [5], либо замещать гидридные связи на оксидные [6]. Кроме того, интенсивность ФЛ может уменьшаться, как мы полагаем, из-за отжига излучающих дефектных центров в поверхностных комплексах.

При отжиге  $150^\circ\text{C}$  в вакууме наблюдается минимум ФЛ (рис.4a). При дальнейшем увеличении  $T_{\text{отж}}$  интенсивность ФЛ начинает возрастать, достигая широкого пологого максимума в интервале  $T_{\text{отж}}=200 - 350^\circ\text{C}$ . При  $T_{\text{отж}}=400^\circ\text{C}$  интенсивность ФЛ резко падает и сохраняется неизменной до  $T_{\text{отж}}=450^\circ\text{C}$ . При  $T_{\text{отж}}=500^\circ\text{C}$  сигнал ФЛ исчезает.

Интересно отметить, что интенсивность сигнала ФЛ образцов ПК, отожженных при  $T_{\text{отж}}=250 - 350^\circ\text{C}$  в вакууме, выше интенсивности сигнала ФЛ у образцов ПК, отожженных при тех же температурах на воздухе, в 8 раз.

В образцах, отожженных в вакууме, достаточно интенсивная ФЛ продолжает наблюдаться вплоть до  $T_{\text{отж}}=400^\circ\text{C}$ , в отличие от образцов, отожженных на воздухе. Достаточно интенсивный сигнал ФЛ, наблюдаемый при отжиге в вакууме при  $T_{\text{отж}}=250 - 350^\circ\text{C}$ , объясняется наличием гидридных связей типа  $\text{Si}_x\text{H}_y$ , которые образовались в процессе травления кристаллического кремния и преобладают при этих условиях отжига [5]. Резкий спад интенсивности ФЛ при  $T_{\text{отж}}$  выше  $350^\circ\text{C}$  происходит вследствие потери водородного покрытия [11] в результате дегидрирования поверхности излучающих НК-центров и роста концентрации центров безызлучательной рекомбинации из-за образования оборванных связей в кремнии [12].

Ранее по данным ИК фурье-спектроскопии FTIR была установлена полная корреляция между изменением интенсивности сигнала ФЛ и интенсивности поглощения на всех типах связях SiH [13]. Об этом же свидетельствуют последние результаты исследования влияния естественного старения на фотолюминесценцию пористого кремния, полученные с помощью ультрамягкой рентгеновской эмиссионной спектроскопии USXES [1, 14], где показано влияние фазового состава образцов ПК на интенсивность и положение пика ФЛ. У свежетравленных образцов ПК

преобладает аморфная гидrogenизированная фаза кремния a-Si:H (48%) и кристаллическая фаза c-Si (42%), и лишь 10% приходится на оксидные фазы SiO<sub>x</sub>+SiO<sub>2</sub>.

Таким образом, мы считаем, что длинноволновая часть спектра ФЛ образцов ПК в области λ<sub>max</sub> = 640 nm для свежеприготовленных образцов ПК обусловлена гидридными комплексами (Si<sub>x</sub>H<sub>y</sub>)<sub>n</sub>, образованными в процессе образования пор.

Для сигнала ФЛ в коротковолновой области спектра с λ<sub>max</sub>=440 nm (рис.4b) в образцах, отожженных на воздухе, наблюдается два максимума, при T<sub>отж</sub>= 100°C, и более интенсивный при T<sub>отж</sub>=200°C. При дальнейшем отжиге их на воздухе наблюдается монотонный спад сигнала ФЛ с небольшим всплеском при T<sub>отж</sub>=350°C.

В образцах, отожженных в вакууме, помимо пика интенсивности сигнала ФЛ при T<sub>отж</sub>= 100°C наблюдается увеличение сигнала в области T<sub>отж</sub>= 200 - 250°C с выходом на плато при T<sub>отж</sub>= 250 - 300°C. При T<sub>отж</sub>=350°C имеет место резкое увеличение сигнала ФЛ, который при дальнейшем отжиге T<sub>отж</sub>= 400°C быстро спадает и исчезает при T<sub>отж</sub>= 500°C.

Такое неоднозначное поведение фотолуминесцентных свойств ПК при отжиге на воздухе и в вакууме в коротковолновой части спектра ФЛ может быть объяснено проявлением излучательных центров в кремниевых НК за счет изменения фазового и элементного состава многокомпонентной, сложной структуры поверхности НК ПК. Увеличение сигнала ФЛ при T<sub>отж</sub>= 100°C как на воздухе, так и в вакууме обусловлено удалением воды, которая экранировала излучение НК-центров. При T<sub>отж</sub>= 200°C на воздухе наблюдается второй максимум ФЛ, более интенсивный, чем первый при T<sub>отж</sub>= 100°C. Этот максимум может быть обусловлен образованием силоксановых соединений при отжиге на воздухе [7]. При этой температуре отжига в вакууме образование силоксановых соединений не происходит, что обуславливает отсутствие сигнала ФЛ.

Уменьшение сигнала ФЛ при T<sub>отж</sub> выше 200°C на воздухе обусловлено окислением поверхности НК в результате образования устойчивых оксидов как за счет трансформации комплексов типа Si<sub>6</sub>O<sub>3</sub>H<sub>6</sub> при удалении водорода из этих комплексов, так и при прямом окислении поверхностных связей НК ПК.

Рост интенсивности сигнала ФЛ при T<sub>отж</sub> выше 200°C в вакууме объясняется образованием различных гидридных комплексов (Si<sub>y</sub>H<sub>x</sub>)<sub>n</sub>. При T<sub>отж</sub> выше 350°C происходит дегидрирование поверхности излучающих НК-центров в результате которого и наблюдается резкий спад интенсивности ФЛ. Наблюдаемый малый по интенсивности рост сигнала ФЛ при T<sub>отж</sub> =350°C на воздухе, по-видимому, имеет аналогичную природу, как и для образцов ПК, отожженных в вакууме.

На рис.5 приведены спектры ФЛ ПК, полученные при различных временах экспозиции на воздухе при комнатной температуре возбуждающего люминесценцию He-Cd лазерного излучения (λ<sub>exc</sub>=325 nm). Видно, что при длительном освещении поверхности образца интенсивность ФЛ падает при сохранении формы и положения максимума сигнала. Интенсивность длинноволновой части спектра ФЛ в течение 1 часа экспозиции лазерного облучения уменьшается быстрее (в 7 раз), чем коротковолновой (2 раза). Дальнейшее увеличение времени экспозиции практически не изменяет интенсивности спектров ФЛ. Изменение интенсивности ФЛ носит обратимый характер, после прекращения освещения в течение несколько часов происходит восстановление исходной интенсивности ФЛ. Такое обратимое изменение интенсивности ФЛ можно объяснить изменением диэлектрической проницаемости среды, окружающей НК [5], за счет протекания фотостимулированных реакций на поверхности ПК [7], при которых происходит образование оборванных связей, и как следствие образуются безызлучательные центры рекомбинации и гашение ФЛ. При выдержке на воздухе происходит обратимое «залечивание» оборванных связей в процессе естественного окисления поверхности НК ПК.

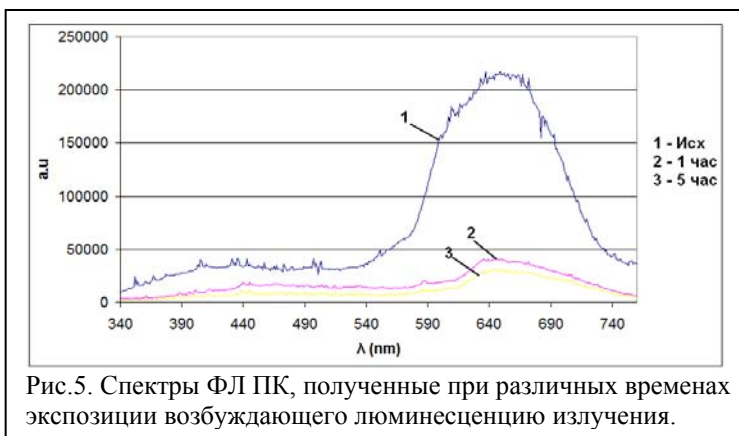


Рис.5. Спектры ФЛ ПК, полученные при различных временах экспозиции возбуждающего люминесценцию излучения.

Таким образом, 1) изменения спектра ФЛ образцов ПК, отожженных на воздухе и в вакууме могут происходить из-за термодесорбции молекул H<sub>2</sub>O (при T<sub>отж</sub> = 100°C) и дегидрирования поверхности светоизлучающих центров в слое ПК (T<sub>отж</sub> = 100 –400 °C); 2) длинноволновая часть спектра ФЛ образцов ПК в области λ<sub>max</sub> = 640 nm для свежеприготовленных образцов ПК обусловлена излучательной рекомбинацией экситонов в некантово-размерных кристаллитах ПК, размеры которых в основном порядка 10 – 20 nm, и

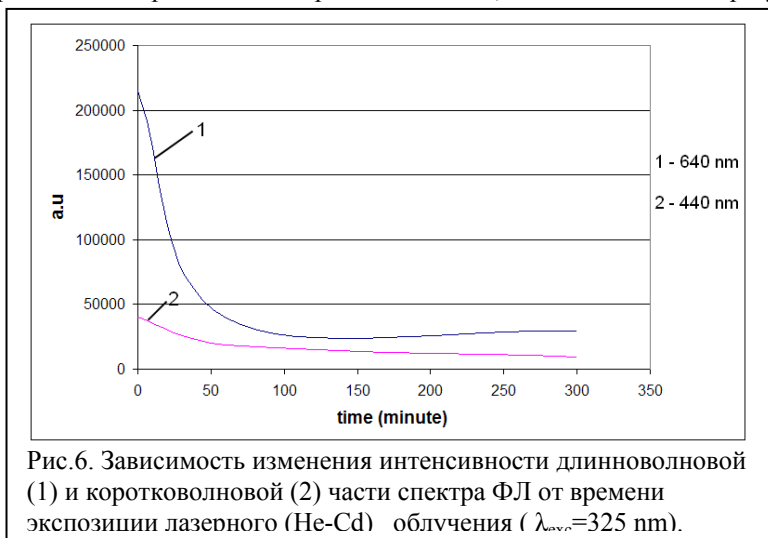


Рис.6. Зависимость изменения интенсивности длинноволновой (1) и коротковолновой (2) части спектра ФЛ от времени экспозиции лазерного (He-Cd) облучения (λ<sub>exc</sub>=325 nm).

поверхностными гидридными комплексами типа  $(Si_yH_x)_n$ , образованными в процессе создания пор; 3) малая интенсивность коротковолновой части спектра ФЛ образцов ПК в области  $\lambda_{\max} = 440 \text{ nm}$  для свежеприготовленных образцов ПК обусловлена в нашем случае малой долей квантово-размерных кристаллитов (1 -1,5 нм); 4) термический ход изменения максимумов интенсивности коротковолновой и длинноволновой части спектра ФЛ ПК обусловлен трансформацией гидридных и оксидных связей в пористом слое при отжиге в вакууме и на воздухе в температурном интервале  $T_{\text{отж}} = 200 - 400 \text{ }^\circ\text{C}$ ; 5) деградация излучательных центров наблюдается при  $T_{\text{отж}} > 400^\circ\text{C}$  и полное отсутствие ФЛ происходит при  $T_{\text{отж}} > 500^\circ\text{C}$ .

#### **Литература**

1. А.С.Леньшин, В.М.Кашкаров, С.Ю.Турищев и др. Влияние естественного старения на фотолюминесценцию пористого кремния. ЖТФ, 2012, т. 82, вып.2, с. 150 – 152
2. Н.Е.Корсунская, Т.Р.Стара, Л.Ю.Хоменкова и др. Природа излучения пористого кремния, полученного химическим травлением. ФТП, 2010, т. 44, вып. 1, с. 82 – 86.
3. К.Б. Тыныштыкбаев, Ю.А. Рябикин, С.Ж. Токмолдин, Т.Айтмуқан, Б.А.Рақыметов, Р.Б.Верменичев. Морфология пористого кремния при длительном анодном травлении в электролите с внутренним источником тока. ПЖТФ.2010. Т. 36. №11, С.104-110.
4. К.Б. Тыныштыкбаев, Ю.А. Рябикин, К.А.Мить, Б.А.Рақыметов, Т.Айтмуқан. Динамика формирования мозаичной структуры пористого кремния при длительном анодном травлении в электролитах с внутренним источником тока .ФТТ, 2011. Т. 53, вып. 8, с. 1498 - 1504.
5. К.Н.Ельцов, В.А.Караванский, В.В.Мартынов. Модификация пористого кремния в сверхвысоком вакууме и вклад нанокристаллитов графита в фотолюминесценцию. ПЖЭТФ. 1996. №2. С.106-111.
6. В.А.Киселев, С.В.Полисадин, А.В.Постников. Изменение оптических свойств пористого кремния вследствие термического отжига в вакууме. ФТП. 1997. №7. С.830-832.
7. Б.М.Костишко, И.П.Пузов, Ю.С.Нагорнов. Стабилизация светоизлучающих свойств пористого кремния термовакуумным отжигом. ПЖТФ, 2000, т.26, вып.1, с. 50 – 55.
8. Б.М.Булах, Н.Е.Корсунская, Л.Ю.Хоменкова и др. О влиянии процесса окисления на эффективность и спектр люминесценции пористого кремния. ФТП, 2006, т.40, вып.5, с. 614 – 620.
9. Т.П.Колмакова, В.Г.Бару, Б.А.Малахов и др.Электро- и фотолюминесценция в тонких пленках пористого кремния. ПЖЭТФ. 1993. №7. С.398-401.
10. Г. Полисский, О.М.Сресели, А.В.Андрианов, Ф.Кох. Люминесценция пористого кремния в ИК области спектра при комнатной температуре. ФТП, 1997, т.31, № 3, с. 365 – 369.
11. П.К.Кашкаров, Е.А.Константинова, С.А.Петрова и др. К вопросу о температурной зависимости фотолюминесценции пористого кремния. ФТП, 1997, т. 31, № 6, с. 745 -748.
12. Н.Е.Корсунская, Т.В.Торчинская, Б.Р.Джумаев и др. Два источника фотолюминесценции пористого кремния. ФТП, 1997, т. 31, № 8, с. 908 -911.
13. А.И.Белогорохов, В.А.Караванский, Л.И.Белогорохов. Взаимосвязь между сигналом фотолюминесценции и поверхностными состояниями пористого кремния, в том числе «свободных» пленок пористого кремния. ФТП, 1999, т. 30, вып.7, с. 1177 -1185.
14. А.С.Леньшин, В.М.Кашкаров, С.Ю.Турищев и др. Влияние естественного старения на фотолюминесценцию пористого кремния. ПЖТФ, 2011, т. 37, вып.17, с. 1 – 8.

## **ХАРАКТЕР ПОВРЕЖДЕНИЯ БЕРИЛЛИЯ СИЛЬНОТОЧНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ**

Дерявко И.И., Кукушкин И.М., Тарасенко Е.В., Бакланов В.В.  
*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

#### **Введение**

Известно (напр., [1]), что материал защитного слоя первой стенки реактора ИТЭР будет подвергаться мощному воздействию теплового и гамма-излучения, а также корпускулярных потоков из плазмы (нейтроны высокой энергии, молекулы, атомы, ионы, электроны). Поэтому исследования характеристик стойкости бериллия – кандидатного материала защитного слоя первой стенки ИТЭР – к воздействию указанных нагрузок является весьма актуальной задачей.

Целью настоящей работы являлось выяснение того, в каком виде протекает процесс повреждения бериллия при импульсном электронном облучении: в виде постепенного нарастания деградации материала от импульса к импульсу или же в виде мощного повреждения в первом импульсе с последующим слабым его увеличением в последующих импульсах. Для решения этой задачи было проведено усовершенствование анодного и катодного узлов вакуумного диода ускорителя электронов ГСЭП-3 и выполнены электрофизические испытания Ве-образцов с отслеживанием морфологических изменений поверхности, степени ее распыления и структурных изменений в материале образцов [2].

#### **Подготовка ускорителя и образцов**



В установке ГСЭП-3 ускорение электронов происходит в межэлектродном зазоре вакуумного диода между взрывоэмиссионным катодом и анодом (образцом), при этом межэлектродный зазор можно изменять в пределах от 20 до 50 мм. Подготовка установки состояла в таком усовершенствовании ее катодного и анодного узлов, которое, во-первых, обеспечит приемлемую равномерность электронного облучения поверхности образца, а во-вторых, повысит надежность определения степени распыления поверхности.

Неравномерность облучения образца, обусловленная как неравномерностью распределения плотности потока электронов, характерной для сильноточных ускорителей с большой площадью сечения пучка, так и особенностями конструкции взрывоэмиссионного катода (ВЭК), может привести к сильному искажению результатов испытаний. Так, при использовании в начальных испытаниях ВЭКа с 19 цилиндрическими фторопластовыми элементами, обернутыми графитовой тканью (рис. 1а), у образцов визуально обнаруживалась явно неодинаковая деградация различных участков облученной поверхности. Поэтому такой ВЭК был заменен на ВЭК в варианте с 93 заостренными графитовыми элементами (рис. 1б).

Надежность определения степени распыления облучаемой поверхности зависит от надежности определения потери его массы. В начальных испытаниях снижение надежности определения этой важной характеристики наблюдалось в отдельных случаях локального приваривания кромки облучаемой поверхности образца к мишени анодного узла. В связи с этим вместо анодного узла с общим для любого типа образцов установочным отверстием в плоской мишени был разработан анодный узел, содержащий три съемные дисковые мишени для каждого из трех типов исследуемых Ве-образцов, то есть текстурированных призматических образцов с облучаемой поверхностью размером 20x20 мм, текстурированных призматических образцов с облучаемой поверхностью размером 15x20 мм и бестекстурных цилиндрических образцов с облучаемой поверхностью диаметром 14 мм.

Представление о конструкции мишеней такого анодного узла можно получить из рис. 1в и 1г, на которых показаны соответственно тыльная сторона мишени для облучения образца с рабочей поверхностью 20x20 мм и фронтальная сторона мишени для облучения цилиндрического образца. Для устранения локального приваривания кромки рабочей поверхности образца к мишени в установочных отверстиях всех трех мишеней предусмотрены зазоры размером не менее 1 мм по всему периметру образца.



Рис. 1. Катоды с 19 (а) и 93 (б) элементами и детали нового анодного узла (в, г)

Подготовка образцов к электрофизическим испытаниям состояли в вырезке партии текстурированных и бестекстурных образцов, изготовлении металлографических шлифов на поверхностях, подлежащих облучению, и материаловедческой аттестации каждого образца в исходном состоянии (макрофотосъемка и измерение массы и высоты образца). Следует отметить, что у текстурированных образцов четыре поверхности с размерами 15x20 мм были параллельны оси текстуры, а две поверхности с размерами 20x20 мм – перпендикулярны этой оси.

#### **Пробные испытания образцов**

В начале пробной испытаний один из образцов с ориентацией рабочей поверхности перпендикулярно оси текстуры был последовательно облучен 1, 2, 4, 10 и 22 электронными импульсами (межэлектродный зазор при этом составлял 42 мм). После каждого из этих пяти циклов импульсов был проведен визуальный осмотр образца, измерение его массы и высоты, а также фотографирование облученной поверхности. В результате было установлено, что процесс повреждения образца электронами в указанных условиях протекает в форме слабого нарастания деградации материала от импульса к импульсу.

В дальнейшем для одного из призматических образцов с ориентацией рабочей поверхности параллельно оси текстуры, в целях усиления влияния облучения, условия испытаний были ужесточены путем уменьшения межэлектродного зазора до 35 мм. При облучении этого образца 1, 4, 6 и 8 импульсами удалось четко зафиксировать постепенное (но все еще слабое) повышение поврежденности поверхности образца и потери его массы (рис. 2) с увеличением количества электронных импульсов.

Из полученного следовало, что ВЭК многоостройной конструкции обеспечивает очень высокую равномерность облучения поверхности бериллиевого образца, но не способен обеспечить облучение этой поверхности с той же средней плотностью энергии (порядка 14 Дж/см<sup>2</sup>), которую создавал прежний ВЭК с 19 катодными элементами. Этим легко объясняется и отсутствие заметной деградации облучаемых новым катодом поверхностей Ве-образцов, и отсутствие значительного распыления материала их поверхностей. В частности, степень распыления поверхности образца после шести импульсов облучения достигла только 1 мг/см<sup>2</sup>, что примерно в 6 раз меньше, чем степень распыления аналогичных поверхностей текстурированных Ве-образцов, облучавшихся ранее ВЭКом с 19 катодными элементами.

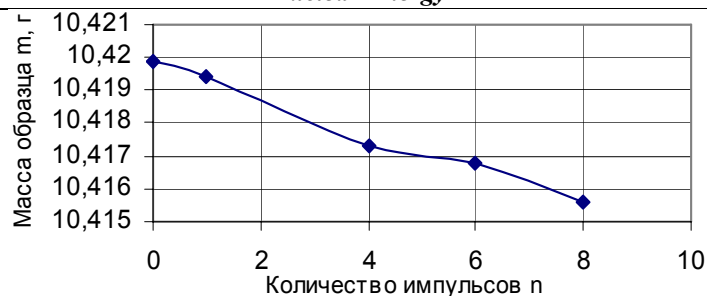


Рис. 2. Изменение массы Ве-образца с увеличением количества электронных импульсов (межэлектродный зазор 35 мм)

В связи с этим было проведено экспериментальное определение средней плотности энергии облучения бериллия многоострийным катодом, которое показало, что ее величина действительно заметно ниже  $14 \text{ Дж/см}^2$ . На рис. 3 представлена полученная из данных информационно-измерительной системы установки ГСЭП-3 диаграмма электрической мощности, вкладываемой в анодный узел установки при выполнении единичного импульса электронного облучения.

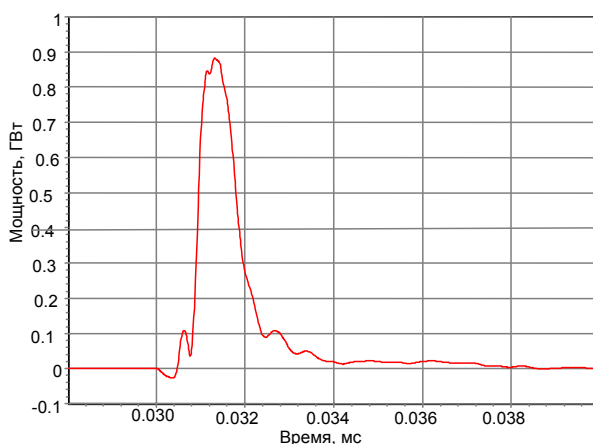


Рис. 3. Полная мощность, вкладываемая в анодный узел при использовании многоострийного катода (ускоряющее напряжение 520 кВ, межэлектродный зазор 35 мм)

Рассчитанное путем интегрирования мощности количество энергии, вкладываемое в анодный узел, оказалось равным 810 Дж, что при площади сечения пучка падающих на анодный узел электронов размером приблизительно  $200 \text{ см}^2$  создает среднюю плотность энергии облучения бериллиевого образца около  $4 \text{ Дж/см}^2$ . Отсюда следовало, что для выполнения испытаний Ве-образцов в условиях, повторяющих условия ранее выполненных начальных испытаний, необходимо было повысить плотность энергии облучения образцов в три с половиной раза.

Попытка повышения плотности энергии облучения образцов путем увеличения ускоряющего напряжения до 600 кВ и дальнейшего уменьшения межэлектродного зазора до 17 мм не принесла желаемого результата, поэтому было решено заменить ВЭК многоострийной конструкции новым ВЭКом.

#### Модернизация катодного узла

Поиски новой конструкции ВЭКа привели к очень простому решению: был изготовлен катод в виде графитовой трубки с внешним диаметром 20 мм, рабочий торец которой содержит 16 мелких насечек в форме насечек монтажного шлямбура. Трубчатая форма катода обеспечивала высокую концентрацию электронов в пучке (особенно вблизи рабочего торца катода), но никак не гарантировала равномерность облучения образца. Поэтому в дополнение к такому катоду была использована накладываемая на поверхность анодного узла фторопластовая экранирующая пластина толщиной 4 мм с отверстием в центре, открывающим поверхность испытываемого образца. Наличие пластины с отверстием способствовало значительной концентрации (сжатию) электронного пучка, что и создавало существенное повышение равномерности облучения поверхности исследуемого образца.

Пробное облучение образцов с использованием трубчатого катода и экранирующе-концентрирующей пластины с отверстием минимального (25 мм) диаметра показало, что в указанных условиях достигается слишком высокая концентрация пучка электронов. Действительно, на поверхностях всех трех типов образцов (одного бестекстурного и двух текстурированных) уже после трех импульсов обнаруживалось (см. рис. 4) очень сильное оплавление, а распыление этих поверхностей оказалась необычно высокой:  $\sim 25$ ,  $\sim 16$  и  $\sim 12 \text{ мг/см}^2$  соответственно для бестекстурного образца, образца с осью текстуры вдоль рабочей поверхности и образца с осью текстуры поперек такой поверхности (следует отметить, что при использовании в начальных испытаниях ВЭКа с 19 катодными элементами после 6 импульсов облучения степень распыления таких же образцов составляла соответственно  $\sim 10$ ,  $\sim 6$  и  $\sim 4 \text{ мг/см}^2$ ).



Рис. 4. Облученные Be-образцы (трубчатый катод, напряжение 520 кВ, межэлектродный зазор 35 мм, диаметр отверстия в пластине 25 мм)

Для снижения чрезмерно высокой концентрации пучка электронов необходимо было увеличить диаметр отверстия в экранирующе-концентрирующей пластине. Было выяснено, что дискретное увеличение диаметра отверстия от исходных 25 мм вплоть до 65 мм каждый раз весьма эффективно уменьшало концентрацию пучка электронов (правда, одновременно с этим так же эффективно снижалась и равномерность облучения образца). При выполнении испытаний с ускоряющим напряжением 520 кВ, межэлектродным зазором 35 мм и пластиной, имеющей 65-миллиметровое отверстие, после шести импульсов облучения образцов были достигнуты результаты, практически полностью совпадающие с результатами, полученными ранее в начальных испытаниях при использовании ВЭКа с 19 катодными элементами.

#### **Основные испытания образцов**

Полученные в пробной серии испытаний результаты позволили выбрать конкретные условия проведения основных испытаний Be-образцов: было решено использовать пластину с компромиссным размером диаметра отверстия, равным 50 мм. Выбранное уменьшение диаметра обеспечило повышение равномерности облучения до приемлемого уровня, а возросшая при этом концентрация пучка электронов была полностью скомпенсирована путем увеличения межэлектродного зазора с 35 до 48 мм и уменьшения ускоряющего напряжения с 520 до 440 кВ (в качестве примера результатов облучения в этих условиях на рис. 5 приведены снимки типичного вида поврежденных поверхностей).

Важно отметить то, что измеренная плотность энергии облучения образцов в выбранных условиях испытаний с использованием трубчатого катода и концентрирующей пластины полностью совпала с плотностью энергии облучения, которую создавал прежний ВЭК с 19 катодными элементами.

Измерения плотности энергии были выполнены на основании данных для полной электрической мощности, вкладываемой в анодный узел в единичном импульсе; оказалось, что вкладываемая в анодный узел энергия равна 540 Дж. Площадь пучка электронов, падающих на анодный узел, составляла  $\sim 38 \text{ см}^2$ ; эта величина была найдена измерением светлого пятна повреждения на поверхности концентрирующей пластины (форма и размер пятна повреждения на пластине – круг с диаметром примерно 7 см). Из полученного следовало, что средняя плотность энергии облучения образцов в выбранных условиях испытаний составляет около  $14 \text{ Дж/см}^2$ .

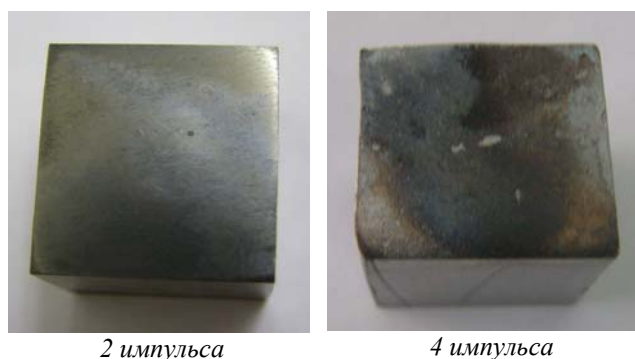


Рис. 5. Облученные Be-образцы (трубчатый катод, напряжение 440 кВ, межэлектродный зазор 48 мм, диаметр отверстия в пластине 50 мм)

Необходимо также отметить, что результаты измерений распыления материала поверхностей образцов оказались в хорошем соответствии с результатами, полученными в экспериментах с прежним ВЭКом с 19 катодными элементами: минимальные распыления наблюдались для поверхностей призматических образцов, перпендикулярных оси текстуры, а максимальные – для поверхностей бестекстурных цилиндрических (при этом уровни распыления образцов, облученных шестью электронными импульсами, были близки к полученным ранее величинам 4, 6 и  $10 \text{ мг/см}^2$ ). Общие результаты по визуальной оценке состояния облученных бериллиевых поверхностей и по измерению распыления этих поверхностей однозначно указали на то, что процесс повреждения каждого из трех типов поверхностей протекает в форме постепенного нарастания деградации материала от импульса к импульсу.



С использованием выбранного режима электронного облучения была продолжена серия основных испытаний по изучению динамики развития поврежденности бериллия при импульсном электронном облучении. Мерой деградации Ве-поверхностей продолжали оставаться визуально оцениваемое изменение внешнего вида поверхности и количественно измеряемая степень распыления ее материала. Уровни деградации поверхностей всех трех типов образцов в этих испытаниях определялись после 2, 4, 6 и 8 импульсов электронного облучения, т.е. для каждого из трех типов образцов были облучены как минимум четыре поверхности.

По завершении испытаний было установлено следующее. Результаты визуальной оценки изменения внешнего вида поверхностей образцов и результаты измерений распыления этих поверхностей в очередной раз подтвердили факт постепенного нарастания деградации поверхности с ростом количества импульсов облучения. В связи с этим на рис. 6 окончательные результаты измерений распыления бериллиевых поверхностей с увеличением количества импульсов электронного облучения представлены как усреднение данных, полученных во всей серии основных испытаний для девятнадцати облученных Ве-поверхностей.

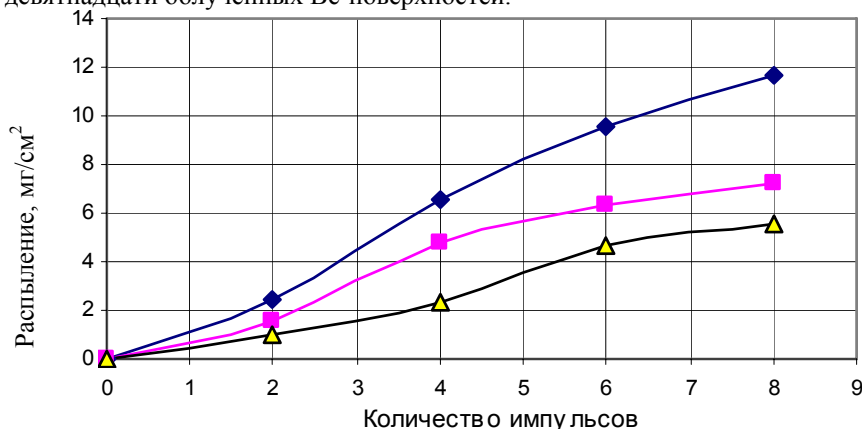


Рис. 6. Распыление бестекстурных поверхностей (ромбы), поверхностей, параллельных оси текстуры (квадраты), и поверхностей, перпендикулярных оси текстуры (треугольники), с увеличением количества импульсов электронного облучения бериллия

Следует обратить внимание на то, что представленные на этом рисунке данные по распылению Ве-поверхностей трех типов содержат в себе основную информацию о стойкости бериллия в условиях облучения сильноточным пучком электронов, поскольку они отражают и характер, и степень деградации поверхности бериллия с увеличением количества импульсов облучения.

Кроме того, эти данные представляют собой достаточно убедительное подтверждение сделанного еще в начальных испытаниях важного вывода о том, что наиболее стойкой к электронному облучению бериллиевой поверхностью является поверхность, перпендикулярная оси текстуры в образце, а наименее стойкой – поверхность бестекстурного образца.

#### **Состояние облученных образцов**

Результаты изучения динамики развития поврежденности бериллиевых поверхностей при электронном облучении были дополнены результатами рентгенографического изучения структурных изменений, возникающих в материале приповерхностных слоев облученных образцов. Для тех облученных Ве-образцов, на рентгенограммах которых присутствовала дифракционная линия  $(104)\text{CuK}\alpha$ , т.е. для бестекстурных образцов и образцов с рабочими поверхностями, параллельными оси текстуры, были измерены такие рентгеновские характеристики материала, как интегральная ширина дифракционной линии  $B_{104}$ , межплоскостное расстояние  $d_{104}$  и отношение интегральной интенсивности линии к интегральной интенсивности фона  $I_{104}/I_{\text{ф}}$ .

Для этих исследований была выбрана простая и экспрессная методика измерения указанных характеристик на пластинах толщиной 0,5 мм, срезанных с облученных образцов со стороны рабочей поверхности. С использованием этой методики были определены значения характеристик  $B_{104}$ ,  $d_{104}$  и  $I_{104}/I_{\text{ф}}$  у двенадцати бериллиевых образцов, облученных двумя, четырьмя, шестью и восемью электронными импульсами. Усредненные по трем измерениям для каждой пластины результаты представлены на рис. 7. Эти результаты достаточно убедительно указали на тот факт, что при электронном облучении бериллия процессы повреждения его структуры (т.е. повышение концентрации точечных дефектов, увеличение уровня микронапряжений и измельчение блоков мозаики [3]) и в текстурированных образцах протекают в форме постепенного нарастания от импульса к импульсу.

Таким образом, следует считать полностью установленным тот факт, что из двух основных вариантов развития поврежденности бериллия сильноточным электронным пучком (постепенное нарастание поврежденности материала от импульса к импульсу или же мощное повреждение в первом импульсе с последующим слабым его увеличением в последующих импульсах) реализуется первый – менее опасный – вариант деградации материала.

#### **Заключение**

При исследовании динамики развития поврежденности поверхности текстурированного и бестекстурного бериллия с увеличением количества импульсов электронного облучения выяснено, что это увеличение вызывает (по данным визуальной оценки морфологического состояния поверхности, измерений распыления ее материала и рентгенографического определения уровня деградации структуры этого материала) постепенное нарастание

поврежденности бериллия, причем как в условиях высокой ( $\sim 14$  Дж/см<sup>2</sup>), так и относительно невысокой (около 4 Дж/см<sup>2</sup>) плотности энергии облучения.

**Литература**

1. Курнаев В.А. Взаимодействие плазмы с поверхностью. – М., МИФИ, 2003, 112 с.
2. Бакланов В.В., Гулькин А.В., Дерявко И.И. и др. Исследование повреждаемости материала защитного слоя первой стенки ИТЭР сильноточным пучком электронов. Доклады междунар. конф. «Ядерная энергетика Республики Казахстан. ЯЭ 2008, Курчатов, 11-13 июня 2008 г.». – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 2009, с. 139–144.
3. Уманский Я.С., Скаков Ю.А., Иванов А.Н., Расторгуев М.Н. Кристаллография, рентгенография и электронная микроскопия. – М., Металлургия, 1982. – 632 с.

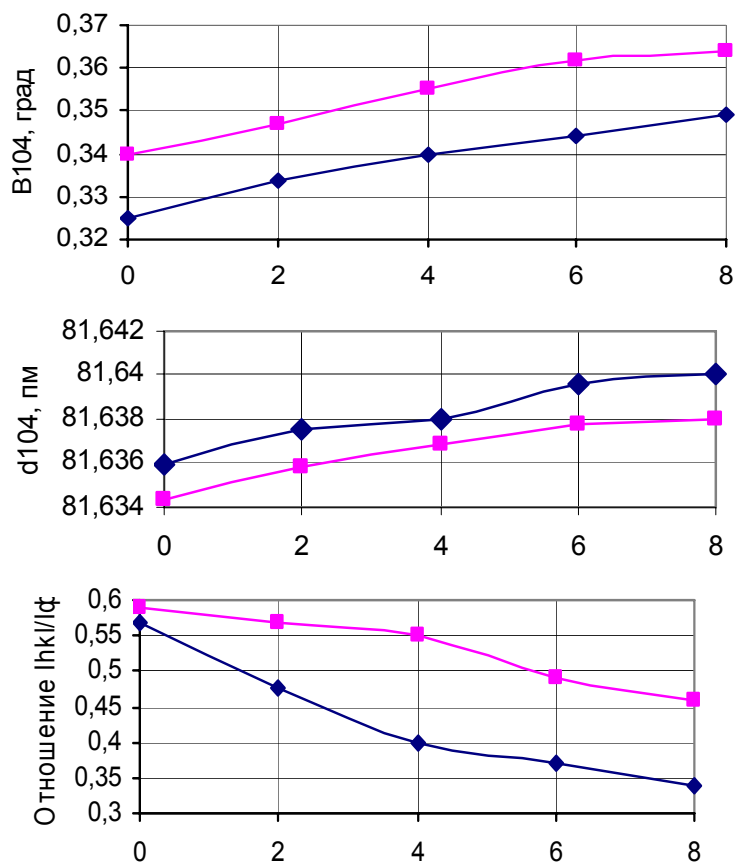


Рис. 7. Изменения рентгеновских характеристик текстурированного (квадраты) и бестекстурного (ромбы) бериллия с увеличением количества импульсов электронного облучения

**EXPERIMENTAL NUCLEAR REACTION DATA LIBRARY (EXFOR) – COMPILATION AND DISSEMINATION  
OF NUCLEAR REACTION DATA PROVIDED BY NUCLEAR REACTION DATA CENTRES NETWORK**

V. Semkova, N. Otuka, S.P. Simakov, V. Zerkin

*International Atomic Energy Agency, P.O. Box 100, Wagramer Strasse 5, A-1400 Vienna, Austria*

### I. Introduction

The International Network of Nuclear Reaction Data Centres (NRDC, <http://www-nds.iaea.org/nrdc/>) constitutes a worldwide cooperation of 14 data centres from 10 countries and 2 international organisations under the auspices of the International Atomic Energy Agency. The NRDC Network coordinates the world-wide collection, compilation and dissemination of nuclear reaction data and related bibliographic information in the EXFOR and CINDA databases [1,2].

Nuclear data are important in many fields of science and applications including: nuclear physics, astrophysics, nuclear chemistry and earth science, fission and fusion technologies, safeguards, dosimetry, environmental monitoring, radiation safety, radioisotope production, medical radiotherapy and diagnostics, activation analysis of materials etc. Considering the diversity of nuclear applications the present aim of the NRDC Network is to compile all types of nuclear reaction data including neutron-, charged-particle-induced and photonuclear data in the incident energy range up to 1 GeV.

The present status of the EXFOR database will be presented together with the latest developments for data access and retrieval.

### II. The International Network of Nuclear Reaction Data Centres

The NRDC Network was established in 1968 by the U.S. National Neutron Cross Section Centre (NNCSC), the ENEA Neutron Data Compilation Centre (CCDN), the IAEA Nuclear Data Unit (NDU), and the Russian Nuclear Data Centre (CJD). Table I shows some of the most important dates in the history of nuclear data collection as well as the evolution of the: 1) EXFOR Format [7], which was originally conceived for the exchange of neutron data, and was further developed to cover all nuclear reaction data and 2) the data types compiled in the database.

At present NRDC Network includes 14 data centres (see Table II) from 10 countries and 2 international organisations. The primary goal of the network is the compilation and dissemination of nuclear reaction data and documentation to users. In addition to the collection and compilation of the experimental nuclear reaction data the following tasks are also carried out by NRDC Network: development of common formats for computerized exchange of nuclear data; development of computer software for managing and disseminating nuclear data; exchange of nuclear data of all types.

Table I. Brief history [3-6].

1951	BNL began compilation of neutron Cross section data
1956	H. Goldstein designed the CINDA format
1964	BNL created SCISRS ( <u>S</u> igma <u>C</u> entre <u>I</u> nformation <u>S</u> torage and <u>R</u> etrieval <u>S</u> ystem)
1965	NEA-DB began collection of neutron data
1966	IAEA began DASTAR ( <u>D</u> ata <u>S</u> torage and <u>R</u> etrieval) and CINDU ( <u>C</u> atalogue of the <u>I</u> AEA <u>N</u> uclear <u>D</u> ata <u>U</u> nit)
1968	NEA-DB created NEUDATA ( <u>N</u> eutron <u>D</u> ata <u>D</u> irect <u>A</u> ccess System)
1969	EXFOR was adopted as the format for the exchange of neutron data
1970	Four-centres began exchange of new data in the EXFOR format
1976	1 <sup>st</sup> NRDC Meeting = the 12 <sup>th</sup> Four-Centres Meeting and the 2 <sup>nd</sup> Charge-Particle Nuclear Data Compilation Meeting

Table II. Nuclear Reaction Data Centres.

NNDC	National Nuclear Data Centre, Brookhaven National Laboratory, USA <a href="http://www.nndc.bnl.gov/">http://www.nndc.bnl.gov/</a>
NEA-DB	OECD NEA Data Bank, France <a href="http://www.nea.fr/databank/">http://www.nea.fr/databank/</a>
NDS	IAEA Nuclear Data Section, Austria <a href="http://www-nds.iaea.org/">http://www-nds.iaea.org/</a>
CJD	Russian Nuclear Data Centre, Institute of Physics and Power Engineering, Russia <a href="http://www.ippe.ru/podr/cjd/">http://www.ippe.ru/podr/cjd/</a>
CNDC	China Nuclear Data Centre, China Institute of Atomic Energy, China <a href="http://www.ciae.ac.cn/">http://www.ciae.ac.cn/</a>
ATOMKI	Nuclear Reaction Data Group, Institute of Nuclear Research, Hungary <a href="http://www.atomki.hu/atomki/CyclApp/">http://www.atomki.hu/atomki/CyclApp/</a>
BARC	Nuclear Data Section, Bhabha Atomic Research Centre, India <a href="http://www.barc.gov.in/">http://www.barc.gov.in/</a>
JCPRG	Japan Nuclear Reaction Data Centre, Hokkaido University, Japan <a href="http://www.jcprg.org/">http://www.jcprg.org/</a>
JAEA-NDC	JAEA Nuclear Data Centre, Japan <a href="http://www.ndc.jaea.go.jp/">http://www.ndc.jaea.go.jp/</a>
KAERI/NDEL	Nuclear Data Evaluation Laboratory, Korea Atomic Energy Research Institute, Korea <a href="http://www.atom.kaeri.re.kr/">http://www.atom.kaeri.re.kr/</a>
CaJaD	Russian Nuclear Structure and Reaction Data Centre, Kurchatov Institute, Russia <a href="http://www.kiae.ru/">http://www.kiae.ru/</a>
CDFE	Centre of Photonuclear Experimental Data, Moscow State University, Russia

	<a href="http://cdfc.sinp.msu.ru/">http://cdfc.sinp.msu.ru/</a>
CNPD	Centre of Nuclear Physics Data , Russian Federal Nuclear Centre, Russia <a href="http://en-cnnpd.vniief.ru/">http://en-cnnpd.vniief.ru/</a>
UkrNDC	Ukrainian Nuclear Data Centre, Institute for Nuclear Research <a href="http://ukrncd.kinr.kiev.ua/">http://ukrncd.kinr.kiev.ua/</a>

### III. Experimental Nuclear Reaction Database

The EXFOR database presently contains information and numerical data from more than 19100 experiments consisting of more than 141700 datasets. The database includes integral, differential and partial cross sections as well as angular distributions, secondary particle spectra, polarization data, resonance parameters, nu-bar, fission product yields, reaction rates etc. The relative numbers of the different types of data are presented in Table III. More information regarding EXFOR statistics including type of the compiled data, targets, incident particles and reactions is available at [http://www-nds.iaea.org/exfor/x4stat/exfor\\_stat.htm](http://www-nds.iaea.org/exfor/x4stat/exfor_stat.htm).

Data are collected from scientific journals, major conference proceedings, and reports. The IAEA Nuclear Data Section and other centres regularly scan about 80 journals in order to keep the EXFOR database complete. Through communications with the authors EXFOR provides original data in many cases when the results are reported on graphs.

Table III. Data types in EXFOR database (Total > 100% because one experimental work can contain many tables with data of many types.)

Quantity	Percent
Cross section data	50.9
Differential data with respect to angle	19.7
Partial differential data with respect to angle	18.8
Resonance parameters	9.19
Partial cross section data	8.37
Polarization data	5.37
Fission product yields	5.13
Differential data with respect to angle and energy	4.8
Others	

In addition to the experimental nuclear reaction data the individual centres may also provide access to the nuclear data libraries, nuclear structure and decay data, and reports. Users are provided with sophisticated search options, a user-friendly retrieval interface for downloading data in different formats, and additional output options such as extensive data plotting capabilities.

### III. IAEA EXFOR Web Retrieval System

The IAEA Nuclear Data Section has developed Web services for data search (Fig 1.) and retrieval as well as different types of presentation, plotting and comparison of information from EXFOR, ENDF and CINDA [8].

The data/information can be presented in: original EXFOR format (X4), extended EXFOR format (X4+), BibTeX, TABLE, BIB and XREF, T4 format, C4 format, extended C4 and R33 format (Fig. 2). The data can be displayed on graphs in static and interactive plots (Fig. 3).

The IAEA Nuclear Data Section has developed a tool for applying renormalization of data sets compiled in EXFOR database. The system allows corrections to experimental data using modern values of monitors and recent standards. Figure 4 shows an example of original (left side) and corrected (right side) EXFOR data for  $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$  reaction and corresponding spline fits. The procedure results in better agreement in the data from different experiments and improvement in the characteristics of the fitting.

### IV. Future developments

In many cases nuclear reaction data have been obtained by experiments with neutron sources that have relatively broad energy (or non-monoenergetic) distribution, such as fission reactors (thermal/fast/filtered fields) and accelerators (thick targets, quasi monoenergetic fields) etc. The IAEA Nuclear Data Section has undertaken an initiative to include in the EXFOR database neutron source information, which will allow correct interpretation of measured results, complete specification of physical process, and comparison with other measurements, evaluations and nuclear model calculations [9].

Recently Nuclear Resonance Fluorescence (NRF) has experienced a renaissance as a novel nondestructive method for detecting clandestine materials. Several studies have already demonstrated the feasibility of this method for detecting different chemical compounds and materials through the probing of constituent stable, radioactive or actinide nuclei. The basic nuclear phenomenon is a gamma inelastic scattering reaction ( $\gamma,\gamma'$ ) with excitation of strong dipole resonance (scissors mode) in the nucleus and consequent prompt  $\gamma$ -ray decays enabling a specific fingerprint of the isotope. NRDC at the recent meeting in April 2011 decided to compile this class of data for actinides, light and medium mass nuclei [10].

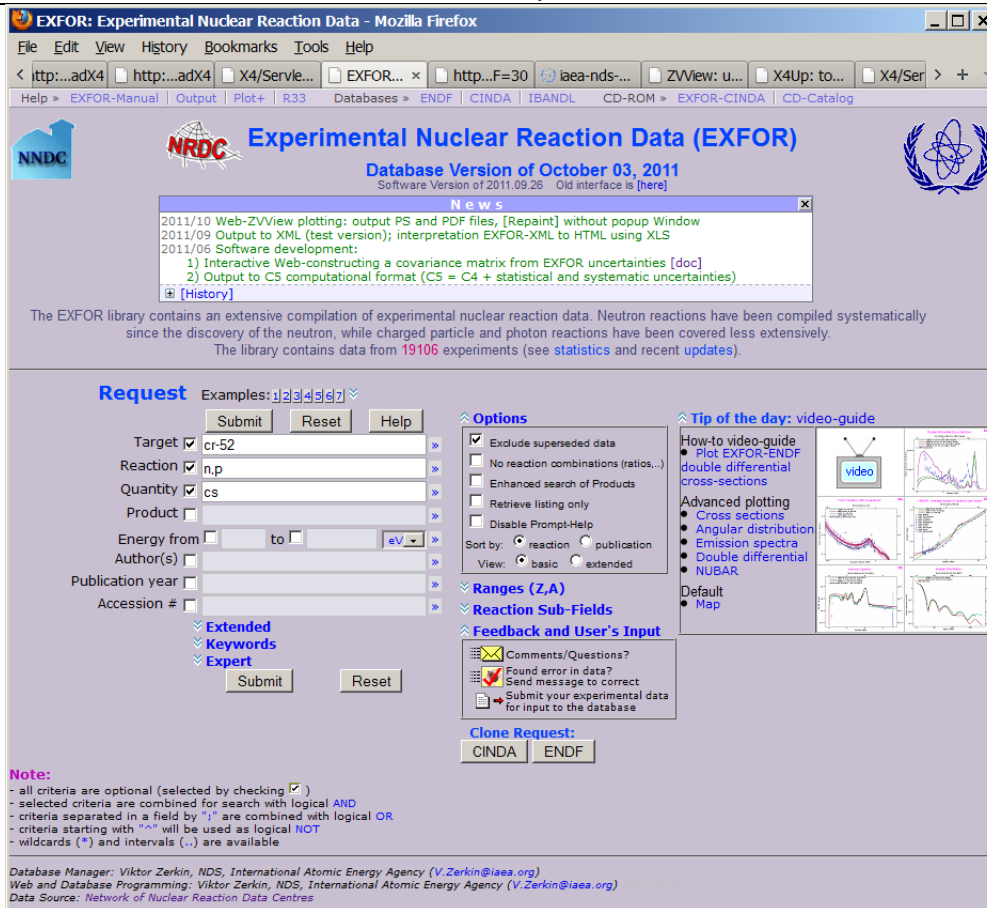


Fig. 1. IAEA EXFOR data search.

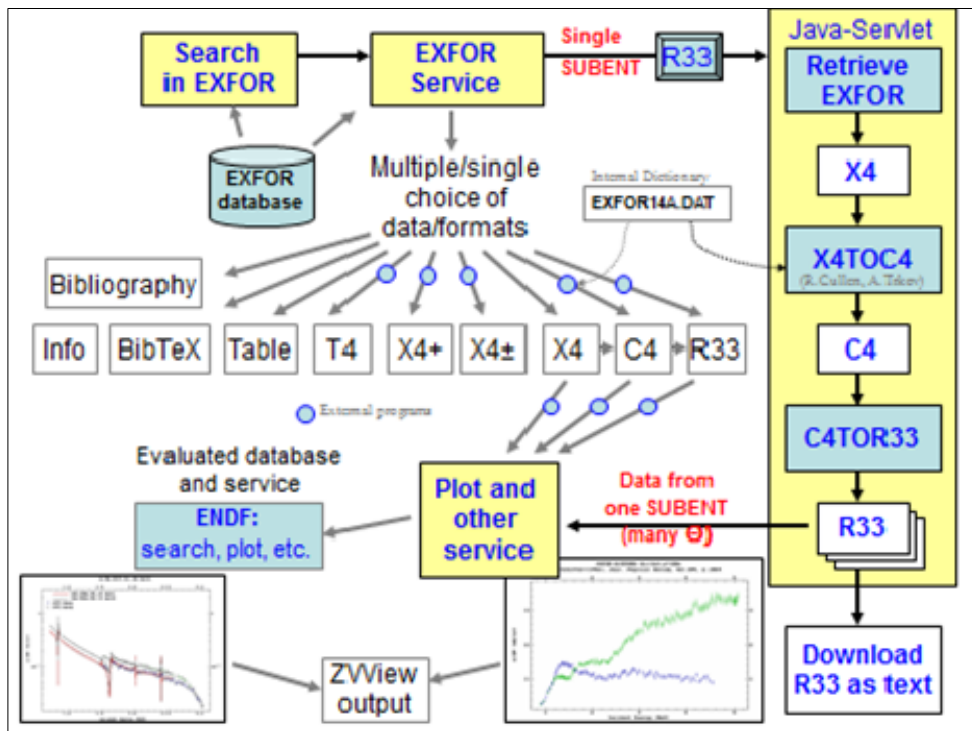


Fig. 2. EXFOR data retrieval system developed by IAEA-NDS.

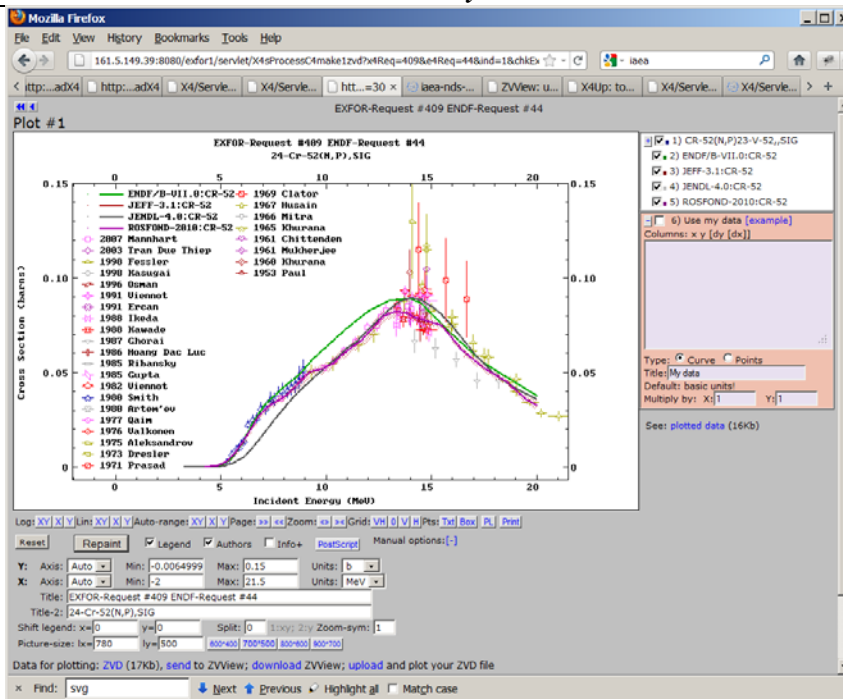


Fig. 3. Graphical display of the retrieved data.

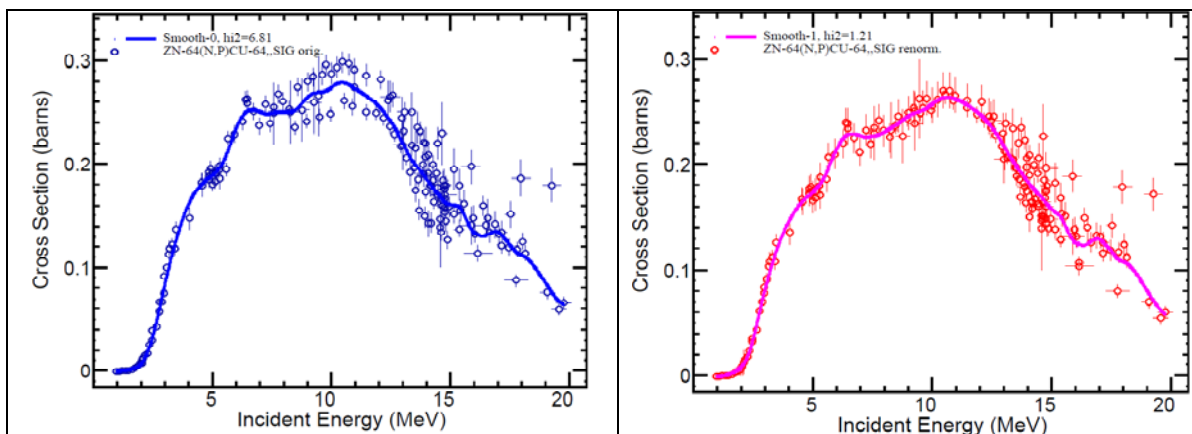


Fig. 4. Example of original (left side) and corrected (right side) EXFOR data for  $^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$  reaction.

**References.**

H. Henriksson *et al.*, “The art of collecting experimental data internationally: EXFOR, CINDA and the NRDC network,” *Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technol. (ND2007)*, Nice, France, 22-27, April, 2007, p737.

N. Otuka, E. Dupont, O. Schwerer, S. Dunaeva, A. Blokhin, “The role of the nuclear reaction data centres in experimental nuclear data knowledge sharing”, *J. Korean Phys. Soc.* 59(2011)1292.

O. Schwerer (ed.), “Report on the Second Consultants’ Meeting on Charged Particle Nuclear Data (CPND) Compilation,” INDC(NDS)-77, International Atomic Energy Agency (1976).

N. E. Holden, “A short history of CSISRS - At the Cutting Edge of Nuclear Data Information Storage and Retrieval Systems and its Relationship to CINDA, EXFOR and ENDF,” NML-75288-2005-IR, Brookhaven National Laboratory (2005).

H. D. Lemmel *et al.*, “Neutron data compilation at the International Atomic Energy Agency,” IAEA(NDS)-001, International Atomic Energy Agency (1968).

European Nuclear Energy Agency, “NEUDADA – system description,” CCDN/SYS-2, European Nuclear Energy Agency (1969).

O. Schwerer (ed.), “EXFOR Exchange Formats Manual,” IAEA-NDS-207, International Atomic Energy Agency (2008).

V. Zerkin, A. Trkov, “Development of IAEA nuclear reaction databases and services”, *Proc. Int. Conf. Nuclear Data for Science and Technol. (ND2007)*, Nice, France, 22-27, April, 2007, p 769.

S. Simakov (ed.), “Summary Report of the Consultants’ Meeting on Neutron Sources Spectra for EXFOR”, INDC(NDS)-0590, International Atomic Energy Agency, (2011).

N. Otsuka (ed.), “Summary Report of IAEA Technical Meeting on the International Network of Nuclear Reaction Data Centres” INDC(NDS)-0593. International Atomic Energy Agency (2011).

## АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ МЕТОДИКА ИДЕНТИФИКАЦИИ И ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТЕЙ ПО АННИГИЛЯЦИОННЫМ $\gamma$ -КВАНТАМ

Артемов С.В., Жураев О.Ш., Караходжаев А.А., Каюмов М.А., Худайкулов И.Х., Якушев В.П.  
Институт ядерной физики Академии наук РУз, 100214 Ташкент, Узбекистан

### Введение.

В экспериментальной ядерной физике и в прикладных ядерно-физических задачах (например, активационный анализ проб, измерение потока нейтронов, измерение сечений и выходов реакций методом активации) часто возникает необходимость идентификации радионуклидов по их периоду полураспада и измерения их активности. Ниже предлагается описание методики и созданной нами автоматизированной измерительной системы, позволяющей определять постоянные распада и активности радионуклидов в образце. Система ориентирована на определение радионуклидов, образующихся при облучении материалов быстрыми нейтронами, и включает в себя ограниченную базу данных по соответствующим радионуклидам.

Процедура анализа состоит из трех этапов:

1. Активация исследуемого образца (например, быстрыми нейтронами нейтронного генератора). При этом, как правило, необходимо фиксировать время начала и время конца облучения, и иметь постоянный в течение этого времени поток активирующего излучения (либо вести непрерывную запись зависимости интенсивности потока от времени).

2. Набор информации. При этом накапливаются значения интенсивности как функции времени каких-либо продуктов распада радионуклидов в пробе. Спектрометрическая информация не накапливается.

3. Анализ набранной информации. Предусмотрены 2 варианта обработки данных – «аналитическая» и «графическая».

В созданной методике эти этапы реализуются с использованием нейтронного потока генератора нейтронов НГ-150 ИЯФ АН РУз, сцинтилляционного спектрометра  $\gamma\gamma$ -совпадений, сопряженного с программно управляемыми счетчиками СИ в комплекте разработанного нами двумерного анализатора импульсов [1] и созданного программного обеспечения. Ниже приведено описание процедуры анализа, используемой на нейтронном генераторе НГ-150 ИЯФ АН РУз.

### I. Процедура активации.

Активация исследуемых образцов на нейтронном генераторе НГ-150 производится быстрыми нейтронами с энергией  $\sim 14$  МэВ при максимальном потоке  $\sim 10^{10}$  н/с в 4л. Использование быстрых нейтронов удобно для активации преимущественно легких радионуклидов, где часто реакции активации нейтронами имеют довольно высокие пороги. Поток нейтронов мониторируется интенсивностью сигналов от  $^3\text{He}$ -содержащего счетчика Гейгера, установленного за полиэтиленовым замедлителем на расстоянии 4.0 м от мишени нейтронного генератора. На рисунке 1 приведена блок-схема спектрометра в варианте анализа пробы, в которой в результате активации образовались  $\beta^+$ -активные радионуклиды. В принципе может быть использован одноплечевой сцинтилляционный или базирующийся на Ge-детекторе спектрометр, настроенный на регистрацию интенсивности одной определенной гамма-линии интересующего радионуклида пробы.

Запись интегрального нейтронного потока и его временной зависимости реализуется по скорости счета нейтронного монитора (МОН) и интегральный поток нейтронов. Процедура мониторинга организуется следующим образом. В момент начала облучения запуск программы запускаются в режим набора счетчик СИ1 импульсов монитора потока нейтронов и счетчик СИ2 импульсов от кварцевого генератора импульсов ГИ, который реализует сквозное измерение времени от начала облучения до завершения измерений. Показания счетчика СИ1 считываются управляющей программой через задаваемые интервалы времени. Интенсивность потока нейтронов регулируется либо регулировкой выхода нейтронов, либо расстоянием гнезда для облучения образцов от нейтронной мишени.

### II. Процедура измерения.

В момент прекращения облучения по синхронизированному с этим моментом сигналу с пульта оператора НГ-150 программа управления прекращает чтение информации от счетчика монитора СИ1 и записывает показания счетчиков СИ1 и СИ2. После установки облученного образца в позицию измерения между сцинтилляционными детекторами (Д) оператор запускает работу счетчика СИ3 от схемы совпадений СС, сигналы которой соответствуют регистрации двух совпадающих аннигиляционных  $\gamma$ -квантов. При этом программа записывает показание счетчика СИ2, соответствующее времени охлаждения образца. Далее автоматически производится запись числа импульсов от СС и ГИ с задаваемым оператором периодом набора  $\Delta t$  импульсов совпадений (10, 60 или 600 секунд). Период набора можно программно изменять в процессе измерения.



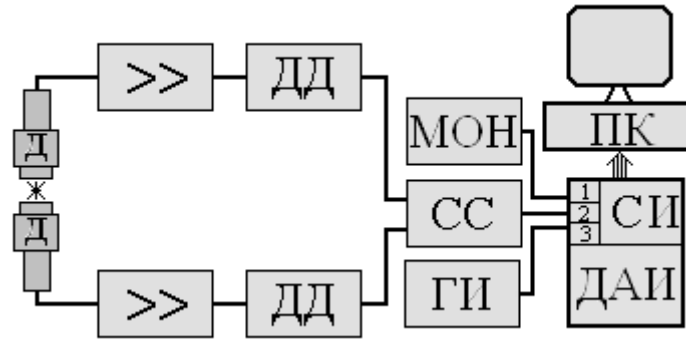


Рис. 1. Блок-схема электроники автоматизированной системы измерения активностей и периодов полураспада для  $\beta^+$  - активных проб.

В приведенном варианте измерений блок-схема двухплечевое сцинтиляционного спектрометра окна дифференциальных дискриминаторов ДД настраиваются таким образом, чтобы разрешающие сигналы от схемы совпадений СС выдавались для сигналов от сцинтиляционных детекторов (усиленных спектрометрическими усилителями >>), амплитуды которых соответствуют фотопикам аннигиляционных  $\gamma$ -квантов.

Длительность процесса измерения в принципе не ограничена и может автоматически прекращаться, когда интенсивность регистрируемых событий становится близка к фоновой. В результате измерения в предположении  $\beta^+$  - активных радионуклидов в анализируемой пробе производится накопление массива  $\{N_j\}$  отсчетов зарегистрированных пар аннигиляционных гамма-квантов от пробы ( $j=1, \dots, j\_max$ ), а также массивов стартовых значений  $\{\tau_j\}$  академического времени начала счета каждого  $j$ -го отсчета и массив длительностей накопления  $\{\Delta t_j\}$  каждого отсчета.

III. Процедура анализа.

Пусть, имеется указанная в II информация, набранная через время охлаждения  $t_c$  после окончания облучения путем регистрации двумя детекторами числа совпадений гамма-квантов с энергией 511 кэВ. Пусть эффективность регистрации числа совпадений спектрометром (Рис. 1, определяемая с помощью образцового спектрометрического гамма-источника (напр., Na-22), есть  $\epsilon$ , а интенсивность фонового счета совпадений есть  $n_f$ .

Предусмотрены 2 варианта обработки данных: 1)- известен радионуклидный состав пробы; 2) радионуклидный состав пробы неизвестен.

В первом варианте предполагается, что есть априорные сведения о радионуклидном составе анализируемой облученной пробы. Пусть для определенности она содержит  $k\_max$  радионуклидов (реально не более 3 – 4) с существенно различными периодами полураспада (и имеющими в нашем случае ветвь  $\beta^+$  - распада). Программа обработки проводит следующие вычисления. Рассчитывается массив значений интенсивностей  $n_j = N_j / \Delta t_j$  -pf через набранные массивы отсчетов и массив значений «академического» времени  $t_{j,k}$ , соответствующего каждой измеренной интенсивности  $t_{j,k} = t_c + \tau_j + \delta_{j,k}$ , где третье слагаемое – коррекция, учитывающая экспоненциальную неравномерность «мгновенной» интенсивности квантов от  $k$ -го радионуклида по временному интервалу измерения  $\Delta t_j$ , которое находится из условия равенства числа распадов  $S_1$  и  $S_2$  во временных интервалах  $\delta_{j,k}$  и  $\Delta t_j - \delta_{j,k}$  – см. Рис. 2.

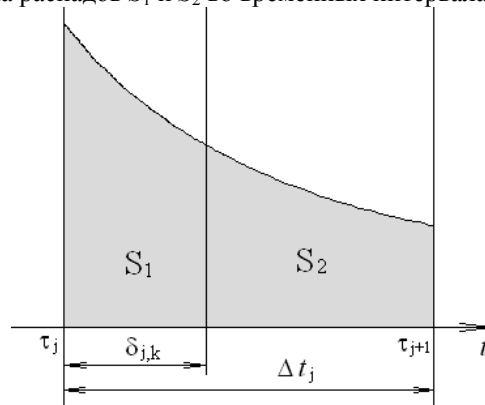


Рис. 2. Поправки к временным интервалам измерения

Сдвиг  $\delta_{j,k}$  легко находится из условия:

$$\int_{t_j}^{t_j+\delta} e^{-\lambda\tau} d\tau = \int_{t_j+\delta}^{t_j+\Delta} e^{-\lambda\tau} d\tau \quad \Rightarrow \quad \delta = \frac{1}{\lambda} [\ln 2 - \ln(1 + e^{-\lambda \times \Delta})] \quad (1)$$

Т.е. академическое время (непрерывно текущее с момента прекращения облучения) здесь различно для каждого радионуклида в пределах интервала измерения и зависит от постоянной его распада. Отметим, что эта коррекция становится пренебрежимо малой, если время измерения  $\Delta t_j$  много меньше периода полураспада наиболее короткоживущего радионуклида.

Значения начальной активности  $A_k$  каждого радионуклида ( $k=1, \dots, k_{\max}$ ) отыскиваются методом наименьших квадратов. Соответствующий функционал  $\chi^2$  имеет следующий вид ( $j_{\max} > k_{\max}$ ):

$$\frac{1}{j_{\max} - k_{\max}} \sum_j \left\{ n_j - \varepsilon \times \sum_k [A_k \times Y_k \times e^{-\lambda_k \times t_{j,k}}] \right\}^2 = \chi^2 \rightarrow \min, \quad (2)$$

откуда получим систему из  $k_{\max}$  линейных уравнений относительно искомым активностей  $A_k$ . Эти значения вместе с соответствующими значениями периодов полураспада, выходов и  $\chi^2$  выводятся программой в качестве результата.

Во втором варианте радионуклидный состав пробы предполагается неизвестным. Однако необходима оценка периода полураспада наиболее короткоживущего радионуклида в пробе, т. к. время измерения  $\Delta t_j$  должно быть мало относительно периода полураспада, иначе погрешность метода становится большой. Как и в 1 варианте используется массив интенсивностей  $n_j$  и значений «академического» времени  $t_j = t_c + \tau_j + \Delta t_j / 2$  соответствующих середине интервала измерения каждого значения интенсивности (в этом случае точные значения поправок (1) не могут быть рассчитаны, т.к. неизвестны значения постоянных распада). Программа строит на дисплее ПК в произвольном масштабе двумерное представление этих данных, где по оси ординат отложены значения логарифмов  $\ln(n_j)$ , а по оси абсцисс – значения  $t_j$ .

Поскольку, как оговорено выше, проба содержит несколько радионуклидов с существенно разными периодами полураспада, то, начиная с какого-то момента времени  $t_i$  в пробе практически останется нераспавшимся только один радионуклид,  $k1$  (с наименьшей постоянной распада  $\lambda_{k1}$ ). С этого момента значения  $\ln(n_j)$  будут группироваться вблизи прямой линии с тангенсом угла наклона, равным « $-\lambda_{k1}$ » и значением ординаты, равным  $\ln(A_{k1})$  при  $t_j=0$ . На Рис. 3 соответствующее двумерное поле и процедура анализа показаны для пробы, содержащей 2 радионуклида: Cu-62 и Cu-64 в результате облучения нейтронами с  $E_n=14$  МэВ образца из химически чистой естественной меди. Программа представляет возможность выделить соответствующую область с помощью двух маркеров (показаны зелеными линиями), и по точкам между маркерами методом наименьших квадратов строит вышеупомянутую прямую. Далее программа выводит найденные при этом значения  $\lambda_{k1}$ ,  $A_{k1}$ , а также имя радионуклида с ближайшим к найденному значением постоянной распада из встроенной библиотеки. Затем программа вычитает из значений  $n_j$  расчетные интенсивности, соответствующие распаду радионуклида  $k1$ , формируя новый массив интенсивностей  $n_j'$  и отображая его на дисплее. После этого повторяется вышеописанная процедура для определения следующего по величине постоянной распада радионуклида в области меньших значений времени (выделена маркерами красного цвета). Процедуру можно продолжать, пока значения интенсивностей  $n_j'$  не станут сравнимы с фоном.

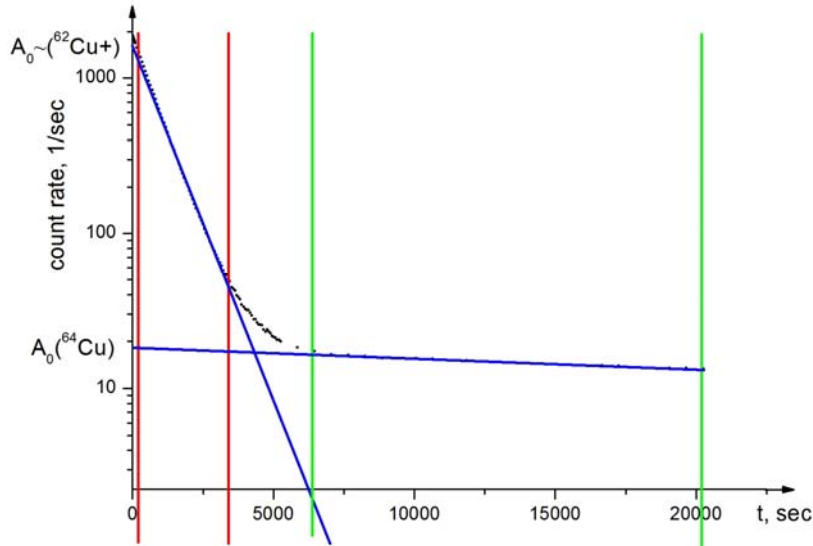


Рис. 3. Двумерное представление результата набора данных. Черные точки – значения интенсивностей  $n_j$ , синие прямые – результат обработки данных между маркерами.

**Выводы.**

На базе нейтронного генератора НГ-150 ИЯФ АН РУз создана автоматизированная измерительная система, позволяющая определять постоянные распада и активности радионуклидов в образцах, активированных потоком быстрых нейтронов. Показана работоспособность методики на образцах, содержащих  $\beta^+$  – активные радионуклиды с периодами полураспада от нескольких минут до нескольких десятков часов.

**Литература.**

1. С.В.Артемов, А.Г.Бажажин, Н.Буртебаев, М.К.Бактыбаев, А.А.Караходжаев, И.В.Нам, А.Ф.Небесный, Г.А.Радюк, В.П.Якушев. ПТЭ, 2009, №1, с.168.
2. Р.А. Кузнецов. «Активационный анализ» АТОМИЗДАТ Москва 1967г. с. 17-22.

Е.Т. Ибраева<sup>1</sup>, Б.А. Прмантаева<sup>2</sup>, А. Темирбаев<sup>2</sup>, И. Тлеусова<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан; <sup>2</sup>Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Астана, Казахстан

Ядра  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  являются нейтроноизбыточными  $\beta$ -радиоактивными с доминирующей структурой  $\alpha+2n$  и  $\alpha+4n$ . Фактами, обосновывающими  $\alpha nn$ -модель ядра  ${}^6\text{He}$  и  $\alpha 2n 2n$ -модель ядра  ${}^8\text{He}$  являются малая энергия связи в канале  $\alpha 2n$  ( $E_{\alpha-2n} = 0.973$  МэВ) и  $\alpha 4n$  ( $E_{\alpha-4n} = 3.1$  МэВ), спектроскопический фактор каналов  $\alpha 2n$  и  $\alpha 4n$  близкий к единице, а также измерение дифференциальных поперечных сечений высокоэнергетичного рассеяния протонов на  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  в инверсной кинематике [1–4], из которых выведены неопровержимые доказательства хорошо определенной кластеризации их на  $\alpha$ -частичный кор и валентные нуклоны, которые формируют скин, и радиус которого равен примерно 0.9 Фм [5, 6].

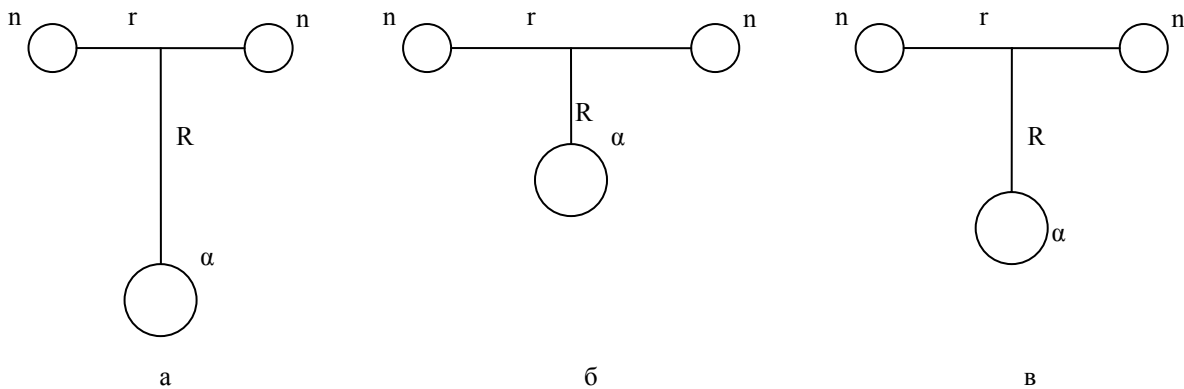


Рисунок. Схема ядра  ${}^6\text{He}$  в трехкластерной модели. Динейтронная (а) и сигарообразная (б) и промежуточная (треугольная) (в) конфигурации.

Анализ геометрической формы состояний ядра  ${}^6\text{He}$  в  $\alpha nn$ -модели [7] (см. рисунок) показывает, что S-состояние включает в себя две геометрические конфигурации: динейтронную  $\alpha+(2n)$  и сигарообразную  $(n+\alpha+n)$  с  $\alpha$ -частицей между двумя нейтронами (см. рисунок). Эти конфигурации характеризуются следующими внутриядерными расстояниями:  $\alpha+(2n) - r = 1.7$  Фм,  $R = 3$  Фм,  $(n+\alpha+n) - r = 4$  Фм,  $R = 1$  Фм, где  $r$ ,  $R$  – среднее расстояние между двумя нейтронами и между центром масс двух нейтронов и  $\alpha$ -частицей. Из-за того, что в  $\alpha+(2n)$  конфигурации  $r = 1.7$  Фм следует, что динейтронный кластер в ядре сильно сжат по сравнению со свободным дейтроном, радиус которого равен  $r_d = 2.69$  Фм. Отношение весов динейтронной конфигурации к сигарообразной равно 2:1, из чего можно сделать вывод о том, что вклад сигарообразной компоненты существенен. Конфигурация P-состояния близка к равностороннему треугольнику с  $r = 2.3$  Фм,  $R = 1.8$  Фм, который вращается вокруг общего центра масс ядра (рисунок в).

Расчет трехкластерной корреляционной функции в рамках алгебраической версии МРГ [8] для ядра  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  подтвердил наличие двух конфигураций ВФ, названных авторами треугольной (аналогичной динейтронной) и линейной (аналогичной сигарообразной). Рассчитанные конфигурации взаимного расположения кластеров для  ${}^6\text{He}$  сравниваются с конфигурацией для  ${}^8\text{He}$  в  $\alpha 2n 2n$ -модели. Найдено, что доминирующая конфигурация в  ${}^8\text{He}$  образует равносторонний треугольник с углом, близким к прямому, в вершине которого находится  $\alpha$ -частица, а в основании – динейтронные кластеры, т.е. имеет место некоторая промежуточная между динейтронной и сигарообразной конфигурация. Различие в геометрии объясняется действием принципа Паули: в  ${}^8\text{He}$  имеет место эффективное отталкивание между динейтронными кластерами, в результате чего они располагаются по разные стороны от  $\alpha$ -частичного кора, в  ${}^6\text{He}$  нейтроны с противоположно направленными спинами в присутствии массивного  $\alpha$ -кора объединяются в компактный динейтрон (среднеквадратичный радиус его в ядре равен 2.52 Фм, что меньше, чем радиус свободного дейтрона на 0.17 Фм).

Размер ядра, также как распределение плотности ядерной материи являются его важнейшими характеристиками, определяющими протяженность ВФ, ядерный потенциал, одночастичные орбитали.

Одним из первых оценил полную материальную плотность  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  Танихата [9, 10] из данных о полных поперечных сечениях, получив значение  $R_m = 2.33(4)$  Фм ( ${}^6\text{He}$ ) и  $2.52(3)$  Фм ( ${}^8\text{He}$ ). Расчет среднеквадратичного радиуса  $R_m$  Алхазовым из анализа экспериментальных данных ДС (дифференциальных сечений) в рамках теории Глаубера, в предположении о плотности ядра  ${}^6\text{He}$  в виде произведения одночастичных плотностей нуклонов, привел к значению 2.3 Фм [1]. Однако это значение не согласуется даже со среднеквадратичным радиусом  ${}^6\text{Li}$ , равным 2.44 Фм (изобарическим аналогом которого в состоянии 3.56 МэВ с  $J^\pi, T = 0^+ 1$  является основное состояние ядра  ${}^6\text{He}$ ). Теоретический анализ, проведенный также в рамках теории Глаубера, но с ВФ, полученными в

полумикроскопических многочастичных моделях привел к выводу, что  $R_m = 2.5$  Фм [2, 3] (при этом среднеквадратичный радиус  $\square$ -частичного кора 1.49 Фм). Многочастичные степени свободы, когда они точно учтены, приводят к увеличению прозрачности ядерных столкновений при больших переданных импульсах и к большей величине ядерных размеров.

В [4] в эксперименте по измерению ДС протонов на ядрах  ${}^6,8\text{He}$ , проведенном в Германии (Дармштадт) на установке IKAR при  $E = 717$  МэВ/нуклон существенно расширена область переданных импульсов  $|t^2|$  до 0.2 (ГэВ/с)<sup>2</sup> (в предыдущих экспериментах [1]  $|t^2| \leq 0.05$  (ГэВ/с)<sup>2</sup>). Из измеренных ДС рассчитаны  $R_m$ ,  $r_c$ ,  $r_h$  с пятью различными плотностями: WS, SF, GH, GG, GO и выведены усредненные данные  $R_m = 2.36(6)$ ,  $r_c = 1.97(9)$ ,  $r_h = 2.97(8)$  Фм, для  ${}^6\text{He}$  и  $R_m = 2.38(6)$ ,  $r_c = 1.79(13)$ ,  $r_h = 2.79(6)$  Фм, для  ${}^8\text{He}$ , которые сравниваются с извлеченными из предыдущего эксперимента [1].

Итоги экспериментального изучения нейтроноизбыточных изотопов гелия и их пространственной структуры при  $E = 0.7$  ГэВ/нуклон, приведены в [2, 3]. Из анализа сечений для упругого рассеяния протонов рассчитаны распределения плотности кора и всего вещества для  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$ . Результаты получены с использованием четырех феноменологических распределений плотности: SF, GH, GG и GO. Вычисленные среднеквадратические радиусы кора, гало и всего вещества ядер  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  следующие:  $R_c = 1.88(12)$  Фм,  $R_h = 3.23(31)$  Фм,  $R_m = 2.45(10)$  для  ${}^6\text{He}$  и  $R_c = 1.55(15)$  Фм,  $R_h = 3.21(12)$  Фм,  $R_m = 2.53(8)$  Фм для  ${}^8\text{He}$ . Значение  $R_p$  в случае  ${}^6\text{He}$  равно  $R_p = 1.88(12)$  Фм, что подтверждается прямым измерением этого радиуса из лазерно-спектроскопического эксперимента [11]. Кроме того, для  ${}^6\text{He}$  получены радиус распределения протонов  $R_p^* = 1.55(10)$  Фм в центре масс кора, радиус  $R_h^* = 2.45(48)$  Фм нейтронного кластера и радиус  $R_n = 2.68(14)$  Фм распределения нейтронов. Эти данные суммированы в табл. 1,2.

В [12] сконструирована 3-х частичная ВФ  ${}^6\text{He}$  в мультикластерной динамической модели (МДМ). Рассчитанный в ней  $R_m = 2.43$  Фм и радиус гало  $\Delta r_h = 0.74$  Фм. В усовершенствованной антисимметризованной версии МДМ (АМДМ) [13] получены значения  $R_m = 2.33$  Фм (АМДМ<sub>С</sub>) и  $R_m = 2.44$  Фм (АМДМ<sub>К</sub>) и  $\Delta r_h = 0.80$  Фм. Из этих расчетов видно, что антисимметризация незначительно влияет на среднеквадратичный материальный радиус и размер скина, также как и на энергию связи двух нейтронов: в обеих моделях она недосвязана ( $E_{2n} = -0.14$  МэВ).

В дальнейшем  $R_m$  оценивался в различных моделях с разными ВФ и плотностями ядра  ${}^6\text{He}$ . Так, в [14] из анализа  $p$ - ${}^6\text{He}$  рассеяния при  $E = 72.5$  МэВ/нуклон, проведенного в полной оптической фолдинг-модели с разными ВФ (BS, FZ4, DH, COSMA) получены значения  $R_m$  от 2.54 Фм (FZ4) до 3.75 Фм (DH); радиусы кора  $r_c$  и гало  $r_h$  также менялись в пределах  $r_c = 1.6 - 2.0$  Фм и  $r_h = 3.39 - 5.84$  Фм. При этом энергия отделения двух валентных нейтронов  $S_{2n}$  соответствовала экспериментальной 0.975 МэВ только для ВФ в BS-модели. Для  ${}^8\text{He}$ :  $R_m = 2.627$  Фм (без учета гало), 2.946 Фм (с учетом гало) и 2.6 Фм (малочастичная модель).

Аналогичный анализ упругого рассеяния протонов на изотопах  ${}^{4,6,8}\text{He}$  [15] в области  $E = 25 - 75$  МэВ/нуклон в фолдинг-модели с эффективным SBM-взаимодействием и девятью плотностями  ${}^6\text{He}$ , полученными в фаддеевском формализме, привели к значениям  $R_m = 2.32 - 2.66$  Фм и  $r_c = 1.84 - 2.05$  Фм. Сравнение данных (среднеквадратичных радиусов, плотностей и др.) для различных изотопов привело к выводу, что по структуре  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  подобны друг другу, а распределения плотности в  ${}^6\text{He}$  и в  ${}^6\text{Li}$  одинаковы.

В [16] рассматривается структура борромиевского ядра  ${}^6\text{He}$  в модели кор+n+n, включая полную 3-частичную динамику. Сравнив расчеты среднеквадратичного материального радиуса для основного состояния  ${}^6\text{He}$ , рассчитанного в 3-х частичных моделях с учетом принципа Паули, получили значения  $R_m = 2.43 - 2.44$  Фм для гауссовского базиса и 2.44 - 2.61 Фм для гиперсферического. Малочастичное кластерное приближение (основанное на МРГ-базисе) дает меньший материальный радиус  $R_m = 2.36 - 2.46$  Фм, возможно, за счет неправильной асимптотики или за счет эффективных NN-сил, не учитывающих сильного отталкивания на малых расстояниях.

Квантовый метод Монте-Карло (КМК) с реалистическими двух- и трех-частичными взаимодействиями позволяет предсказать радиусы легких ядер вполне надежно, так что прямое сравнение ядерных размеров и полных поперечных сечений реакций становится возможным. Из анализа данных дифференциальных сечений при  $E = 0.7$  ГэВ/нуклон в [17] получены среднеквадратичные материальные радиусы в нескольких моделях  $R_m = 2.51$  (кластерная модель),  $R_m = 2.56$ ,  $r_p = 1.96$ ,  $r_n = 2.81$  Фм, (ВМК – вариационный метод Монте-Карло),  $R_m = 2.61$  Фм,  $r_p = 1.92$ ,  $r_n = 2.87$  Фм (ГММК – гриновский метод Монте-Карло). Несколько увеличенный размер  ${}^6\text{He}$  в ГММК может быть результатом того, что имеет место некоторая недооценка ДС в ГММК.

Расчет радиусов в алгебраической версии МРГ [8] приводит к следующим результатам:  $R_m = 2.69$ ,  $r_p = 2.06$ ,  $r_n = 2.96$  Фм, (для  ${}^6\text{He}$ ) и  $R_m = 2.73$  Фм,  $r_p = 2.08$ ,  $r_n = 2.91$  Фм (для  ${}^8\text{He}$ ).

Оболочечная модель большого базиса (LSSM) в сочетании с глауберовским механизмом взаимодействия успешно применяется для расчетов характеристик рассеяния протонов на легких ядрах. В [18] протонная и нейтронная плотности ядер  ${}^{6,8}\text{He}$  рассчитаны в LSSM с базисными функциями гармонического осциллятора. LSSM

плотность (полученная в полной  $4\hbar\omega$  оболочечной модели с использованием базисной Вудс-Саксоновской одночастичной ВФ с реалистическим экспоненциальным асимптотическим поведением) наиболее предпочтительна, поскольку приводит к лучшему согласию упругого  $p^6\text{He}$ -рассеяния. Физические причины последнего заключаются в том, что LSSM плотность имеет экспоненциальную асимптотику, более протяженную при больших  $r$ , чем плотность, основанная на гауссоидах. Получены  $R_{ch} = 2.147$ ,  $r_p = 1.945$ ,  $r_n = 2.900$  Фм,  $R_m = 2.621$  для  $^6\text{He}$  и  $R_{ch} = 2.140$ ,  $r_p = 1.924$ ,  $r_n = 2.876$  Фм,  $R_m = 2.67$  Фм для  $^8\text{He}$ , которые сравниваются с результатами предыдущих работ.

В [19] выведены формулы для расчета материальных и зарядовых радиусов  $^6\text{He}$  в трехчастичной  $\alpha$ - $n$ -модели (рассчитанной вариационным стохастическим методом с 3-х частичным гамильтонианом). Материальный радиус, извлеченный из протонного упругого рассеяния  $R_m = 2.30(7)$  Фм, оказался меньше, чем  $R_m = 2.48(3)$  Фм, выведенный из анализа полного сечения взаимодействия. Теория с G3RS-потенциалом (гауссов с мягким кором) и MN (Minnesota)-потенциалом предсказывает слишком большой материальный радиус для  $^6\text{He}$   $R_m = 2.56$  и  $2.63$  Фм, что связано с пересвязанностью (на 400–500 кэВ по сравнению с экспериментальной) энергии связи, рассчитанной с реалистическими NN-потенциалами, тогда как зарядовый радиус  $r_c = 2.07$ –  $2.09$  Фм согласуется с экспериментальным  $2.054$  [11]. Чтобы подогнать энергию связи, потенциал MN перенормировали, увеличив силу длинноволновой области и назвав его MMN (модифицированный MN). Как ожидалось,  $R_m$  теперь уменьшился с  $2.63$  до  $2.49$ , что согласуется с величинами извлеченными из измеренного ПС взаимодействия и с расчетами в полной микроскопической трехкластерной модели [15].

Эти данные суммированы в табл. 3.

В настоящее время наиболее точным является лазерно-спектроскопический метод, в котором измеряют сверхтонкую структуру и изотопный сдвиг атомных переходов между двумя изотопами, охлажденными и уловленными в магнито-оптической ловушке, из чего определяют разность между зарядовыми радиусами исследуемых изотопов. Базируясь на абсолютной величине зарядового радиуса  $R_{ch}^{4\text{He}} = 1.676(8)$  Фм [20], измеренного методом спектроскопии мюонных атомов  $^4\text{He}$ , в [11] методом лазерной спектроскопии определен среднеквадратичный ядерный зарядовый радиус  $^6\text{He}$ :  $R_{ch}^{6\text{He}} = 2.054(14)$  Фм. Определенный этим методом точечный среднеквадратичный протонный радиус, на который обычно ссылаются, имеет значение  $r_p = 1.91(2)$  Фм [11].

Немного позже значение  $R_{ch}^{6\text{He}}$  было уточнено  $R_{ch}^{6\text{He}} = 2.068(11)$  Фм и определен зарядовый радиус  $^8\text{He}$   $R_{ch}^{8\text{He}} = 1.929(26)$  Фм [21].

Сравнение среднеквадратичных материальных и зарядовых радиусов изотопов  $^6\text{He}$  и  $^8\text{He}$ , проведенное в [21] демонстрирует интересную картину: материальный радиус  $^8\text{He}$  больше, чем  $^6\text{He}$ , тогда как зарядовый радиус меньше. То, что  $R_m^{8\text{He}} > R_m^{6\text{He}}$  понятно и объясняется большим числом нуклонов. Однако обратное неравенство для зарядовых радиусов  $R_{ch}^{8\text{He}} < R_{ch}^{6\text{He}}$  нуждается в объяснении. Большой (по сравнению с  $^8\text{He}$ ), зарядовый радиус  $^6\text{He}$  определяется его внутренним строением: два избыточных нейтрона коррелированы так, что более вероятно их нахождение по одну сторону кора (динейтрон), чем на противоположных сторонах (сигарообразная конфигурация). В результате, движение  $\alpha$ -кора по отношению к коррелированной паре нейтронов размывает зарядовое распределение по большему объему. Напротив, в  $^8\text{He}$  четыре избыточных нейтрона распределены более сферически-симметричным образом в гало и размывание заряда в коре соответственно меньше, что приводит к уменьшению зарядового радиуса [21].

Таблица 1. Среднеквадратичные радиусы: материальный  $R_m$ , нейтронный  $r_n$ , протонный  $r_p$ , гало  $r_h$  и кора  $r_c$  для  $^6\text{He}$ , извлеченные из экспериментов, по результатам разных работ

№ пп	$R_m$ (Фм)	$r_n$ (Фм)	$r_h$	$r_p$ (Фм)	$r_c$	$\delta_{np} = r_n - r_p$ (Фм)	Ссылка
1	2.48(3)	2.61(3)		2.21(3)			9
2	2.33(4)	2.59(4)		1.72(3)		0.87(6)	10
3	2.30(7)		2.97(26)		1.88(12)		1
4	2.36(6)		2.97(8)		1.97(9)		4
5	2.45(10)		3.23(31)		1.88(12)		2, 3

Таблица 2. Среднеквадратичные радиусы: материальный  $R_m$ , нейтронный  $r_n$ , протонный  $r_p$ , гало  $r_h$  и кора  $r_c$  для  $^8\text{He}$ , извлеченные из экспериментов, по результатам разных работ

№ пп	$R_m$ (Фм)	$r_n$ (Фм)	$r_h$	$r_p$ (Фм)	$r_c$	$\delta_{np} = r_n - r_p$ (Фм)	Ссылка
1	2.52(3)	2.64(3)		2.15(2)			9

*Nuclear Physics*

2	2.37(18)	2.50	1.89	0.61	2
3	2.45(7)	3.09(11)	1.55(15)		1
4	2.38(6)	2.79(6)	1.79(13)		4
5	2.53(8)	2.68 3.21(12)	1.55(15)		3

Таблица 3. Среднеквадратичные радиусы (в Фм): материальный  $R_m$ , нейтронный  $r_n$ , протонный  $r_p$ , гало  $r_h$  и кор  $r_c$  для  ${}^6\text{He}$ , рассчитанные разными методами.

№ пп	$R_m$	$r_n$	$r_h$	$r_p$	$r_c$	$\delta_{np} = r_n - r_p$	Ссыл ка	Примечание
10	2.43					0.74	12	МДМ
11	2.44					0.8	13	АМДМ
1	2.54-3.75		3.39-5.84		1.6-2.0		14	Малочаст. ВФ
2	2.32-2.66				1.84-2.05		15	Малочаст. ВФ
3	2.43-2.44 2.44-2.61 2.36-2.46						16	Гаусс.баз. Гиперсфер.баз. Малочаст. ВФ
4	2.56 2.61	2.81 2.87		1.96 1.92			17	ВМК ГММК
5	2.69	2.96		2.06		0.9	8	Алгебр. МРГ
7	2.62	2.90		1.945		$R_{ch}=2.147$	18	LSSM
9	2.56 2.63 2.49				2.07 2.09 2.04	$R_{ch}=2.07$	19	G3RS MN MMN

**Выводы**

На основании детального изучения был сделан вывод о структуре  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$ : они состоят из  $\alpha$ -частичного кора и валентных нуклонов, которые формируют скин, и радиус которого равен 0.9 фм [5, 6]. В результате сравнения данных, полученных разными методами, можно сделать следующий вывод: расчет с трехчастичными ВФ, приводит к среднеквадратичному радиусу на 0.1 – 0.2 Фм больше, чем расчет с одночастичными плотностями, выполненный в [1, 9]. Анализ показывает, что увеличение радиуса происходит за счет свойственной многочастичным ВФ внутренней составной структуры и их протяженной асимптотики. Как отмечено авторами, проводящими расчеты в различных трехчастичных моделях с реалистическими или эффективными парными взаимодействиями, они имеют общую проблему недосвязанности энергии  $\sim E_{2n} = -0.4$  МэВ (вместо  $E_{2n}^{\text{exp}} = -0.973$  МэВ). Поэтому для того, чтобы согласованно описать радиусы и энергию связи, изменяют форму эффективного потенциала, учитывают другой близкий канал (t+t) или поляризацию  $\alpha$ -кора.

Сравнение ядер  ${}^6\text{He}$  и  ${}^8\text{He}$  показывает, что добавление большего числа валентных нуклонов к  $\alpha$ -частичному кору препятствует дополнительному пространственному «разбуханию» ядра, что и определено отношением величин зарядовых радиусов.

**Список используемых источников**

1. Alkhasov G.D. et al. Structure signatures in proton scattering from  ${}^{6,8}\text{He}$  // Phys. Rev. Lett. 1997. V. 78. P. 2313
2. Neumaier S.B., Alkhasov G.D., Andronenko M.N. et al. Small-angle proton elastic scattering from the neutron-rich isotopes  ${}^{4,6,8}\text{He}$  // Nucl. Phys. A712 (2002) 247; 269
3. Alkhasov G.D., Dobrovolsky A.V., Lobodenko A.A. . Experimental studies of the nuclear spatial structure of neutron-rich He and Li isotopes // ЯФ 2006, т.69, с.1157
4. Aksouh F., et al. New results on the core-halo spatial structure  ${}^6\text{He}$  and  ${}^8\text{He}$  from proton elastic scattering 10<sup>th</sup> Int. Conf. on Nucl.ReacMech. Varenna, 2003, Suppl 122, 2003p.157
5. Al-Khalili J. S. and Tostevin J. A. Few body calculations of proton- ${}^{6,8}\text{He}$  scattering. // Phys. Rev. C. 1998. V. 57. P. 1846.
6. Giot L. et al. Investigation of  ${}^6\text{He}$  cluster structures // Phys. Rev. C. 2005. V. 71. P. 064311.
7. Ибраева Е.Т., Жусупов М.А., Имамбеков О. Структура легких нейтроноизбыточных ядер и механизм упругого рассеяния протонов // Ядерная физика. 2011. Т. 74, № 11.
8. Василевский В.С. и др. // Scientific Papers Inst. for Nucl. Res. 2002. №2 (8). P.512.
9. Tanihata I. et al. Measurement of interaction cross sections using isotope beams of Be and B and isospin dependence of the nuclear radii // Phys. Lett. B 1988. V. 206. P. 592.
10. Tanihata I. et al. Proton elastic scattering with  ${}^6\text{He}$  and  ${}^8\text{He}$  and its halo structure // Phys. Lett. B 1992. V. 289. P. 261.
11. Kukulín V. I., Krasnopl'ski V. M., Voronchev V. T. et al. // The structure of  ${}^6\text{He}$  -  ${}^6\text{Li}$  -  ${}^6\text{Be}$  nuclei in the  $\alpha+2N$  - model Nucl.Phys. A. 1986. V. 453. P. 365.
12. Kukulín V.I., Pomerantsev V.N., Razikov Kh.D. et al. Detailed study of the cluster structure of light nuclei in a three-body model // Nucl.Phys. - 1995. - V.A586. - P. 151-158.

13. Wepper S.P., Garcia O., Elster Ch. Sensitivities of the proton-nucleus elastic scattering observables of  ${}^6\text{He}$  and  ${}^8\text{He}$  at intermediate energies // Phys. Rev. C. 2000. V. 61. 044601.
14. Gupta D., Samanta C., Kanungo R. Consistent analysis of proton elastic scattering from  ${}^{4,6,8}\text{He}$  and  ${}^{6,7,9,11}\text{Li}$  in the energy range of 25-75 A MeV // Nucl. Phys. A. 2000. V. 674. P. 77.
15. Danilin B. V. Thompson I. J., Zhukov M. V. et al. Few-body cluster models for Borromean halo nuclei // Ядерная физика. 2001. Т. 64. С.1290.
16. Varga K., Pieper S. C., Suzuki Y. and Wiringa R.B. Monte Carlo integration in Glauber model analysis of reactions of halo nuclei // Phys. Rev. C. 2002. V. 66. P. 034611.
17. Antonov A. N. et al. Charge and matter distributions and form factors of light, medium and heavy neutron-rich nuclei // Phys. Rev. C. 2005. V. 72. P. 044307.
18. Wang L.-B., Mueller P., Bailey K. et al. Laser Spectroscopic Determination of the  ${}^6\text{He}$  Nuclear Charge radius // Phys. Rev. Lett. V. 93. 142501 (2004)
19. Horiuchi W. et al. Momentum distribution and correlation of two-nucleon relative motion in  ${}^6\text{He}$  and  ${}^6\text{Li}$  // Phys. Rev. C. 2007. V. 76. P. 024311.
20. Sick I. Charge radius and dipole response of  ${}^6\text{He}$  // Phys. Lett. B. 1982 V. 116. P. 212
21. Mueller P., Sulai I.A., Villary A.C.C. et al. Nuclear Charge Radius of  ${}^8\text{He}$  // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 99. P. 252501.

### АНАЛИЗ СФЕРИЧНОСТИ МЕЗОНОВ В АНТИПРОТОН-ПРОТОННЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ ПРИ ИМПУЛЬСЕ 22,4 ГЭВ/С

Боос Э.Г., Темиралиев Т., Избасаров М., Самойлов В.В.  
Физико – технический институт, Алматы, Казахстан

В современном представлении множественные процессы возникают в результате адронизации кварков [1], входящих в состав взаимодействующих частиц. Механизм множественного рождения адронов исследуются различными методами, среди которых весьма информативным является метод анализа переменной сферисити  $S$  [2], характеризующей степень изотропии испускания вторичных частиц относительно некоторого выделенного направления, в системе центра масс это линия соударения первичных частиц.

По кварк – партонной модели вторичные частицы в антипротон – протонной аннигиляции рождаются в виде трех кварковых цепочек [3], а в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях – в виде кварковой и дикварковой цепочек [4]. Отсюда следует ожидать, что вылет частиц в процессах  $\bar{p}p$  - аннигиляции и неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях в импульсном пространстве должны отличаться. Поэтому представляет интерес изучение коллективного параметра в событии - сферисити  $S$ .

Переменная сферисити  $S$  определяется формулой

$$S = 3/2 \min \frac{\sum \bar{p}_{\perp i}^2}{\sum \bar{p}_i^2} \quad (1)$$

Здесь  $\bar{p}_i$ ,  $\bar{p}_{\perp i}$  - импульс  $i$  – частицы и его поперечная составляющая в системе центра масс.

В данной работе анализируются экспериментальные данные, полученные при экспонировании двухметровой водородной камеры «Людмила» Объединенного Института ядерных исследований пучком антипротонов с импульсом 22,4 ГэВ/с на ускорителе У-70 Института физики высоких энергий (г. Серпухов, Россия).

Методика разделения событий антипротон – протонной аннигиляции и неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействий при 22,4 ГэВ/с изложена в статье [5].

На рис. 1 а,б,с представлены двумерные графики, отражающие зависимость сферисити  $S$  от максимального поперечного импульса  $p_T^{\max}$  в событиях антипротон – протонной аннигиляции для множественностей  $n \geq 2$ ,  $n \geq 4$  и  $n \geq 6$  соответственно, а также распределения  $S$  и  $p_T^{\max}$  для этих трех групп. Исследование по множественностям  $n \geq 2$ ,  $n \geq 4$  и  $n \geq 6$  имело целью выявление зависимости величин  $S$  и  $p_T^{\max}$  от рассматриваемой множественности. Из анализа этих данных была выявлена слабая зависимость распределений от числа рожденных мезонов.

В реакции перезарядки (протона и антипротона соответственно на нейтрон и антинейтрон)  $\bar{p}p \rightarrow n\bar{n}k(\pi^+\pi^-X^0)$  было замечено, что распределения сферисити событий схожи с распределениями вылета событий в антипротон – протонной аннигиляции. Поэтому возникла идея проанализировать сферичность событий после исключения данных о протоне и антипротоне в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях.



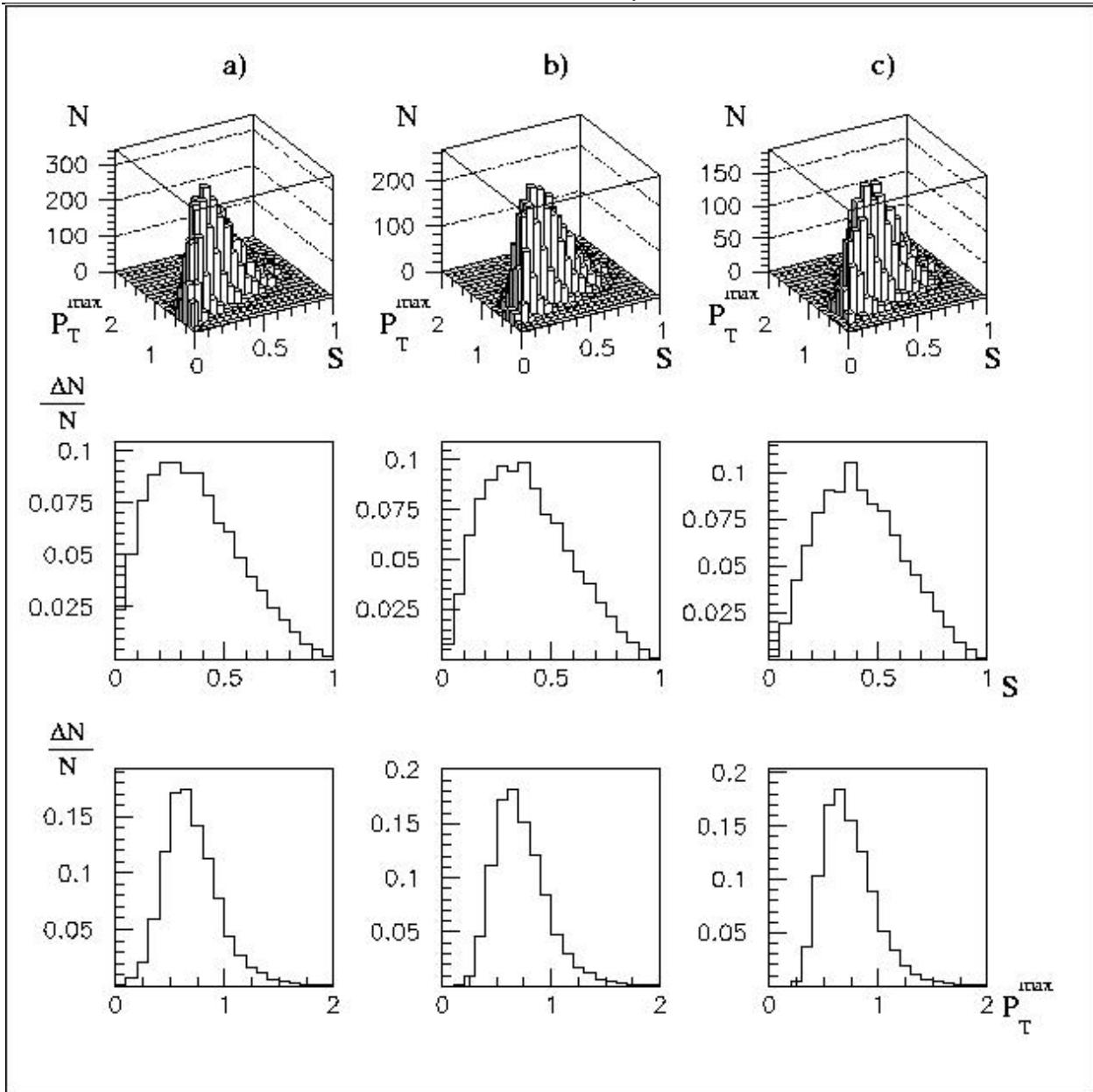


Рис. 1. Зависимость сферисити от максимального поперечного импульса частиц и распределения  $S$  и  $p_T^{\max}$  в событиях антипротон – протонной аннигиляции при 22,4 ГэВ/с:  
 а) – данные для событий с множественностью  $n \geq 2$ ; б) -  $n \geq 4$ ; в) -  $n \geq 6$ .

На рис. 2 и 3 приведены аналогичные графики для неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействий. На рис. 2 переменные  $S$  и  $p_T^{\max}$  определялись с учетом всех заряженных частиц, а на рис. 3 переменные  $S$  и  $p_T^{\max}$  вычислялись только по заряженным мезонам, т.е. исключались данные о протоне и антипротоне.

Распределения  $S$  и  $p_T^{\max}$ , полученные с учетом всех заряженных частиц в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях, отличаются от соответствующих распределений в случае исключения данных о протоне и антипротоне.

Из рис. 2 и 3 видно, что с ростом множественности в распределениях сферисити максимум сдвигается в область больших значений  $S$ , а в распределениях  $p_T^{\max}$  максимум смещается в сторону меньших значений поперечного импульса при исключении данных о протоне и антипротоне в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях.

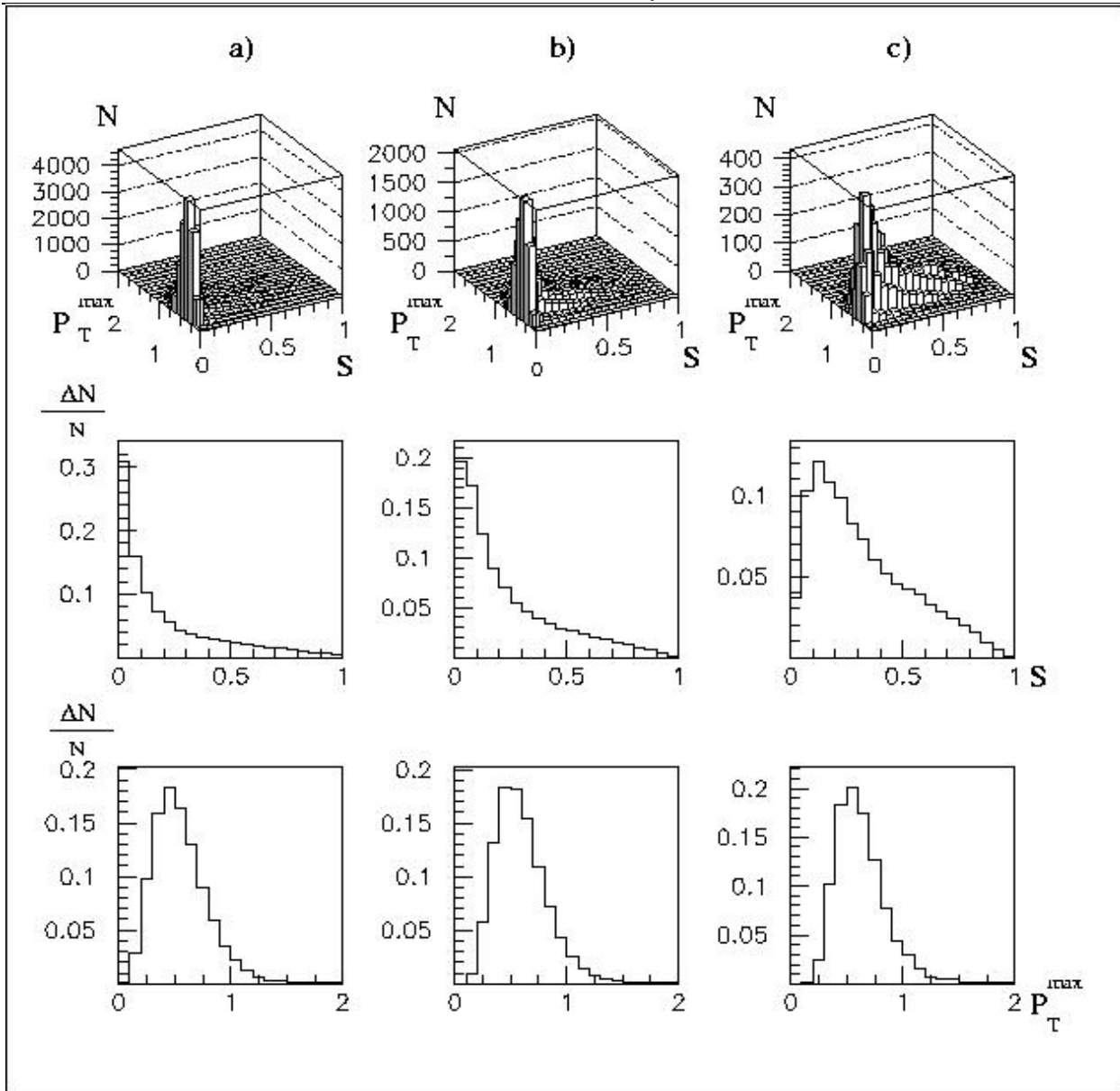


Рис. 2. Зависимость сферисити от максимального поперечного импульса частиц и распределения  $S$  и  $p_T^{\max}$ , вычисленных с учетом всех заряженных частиц, в неаннигиляционных  $\bar{p}p$ -взаимодействиях при 22,4 ГэВ/с : а) – данные для событий с множественностью  $n \geq 2$ ; б) -  $n \geq 4$ ; в) -  $n \geq 6$ .

Отметим, что распределения по переменной сферисити, полученные в событиях антипротон – протонной аннигиляции (рис. 1) сильно отличаются от распределений, полученных в неаннигиляционных  $\bar{p}p$ -взаимодействиях по всем заряженным частицам (рис. 2), и становятся схожими с распределениями, полученными в неаннигиляционных  $\bar{p}p$ -взаимодействиях при исключении данных о протоне и антипротоне (рис. 3). При этом, несмотря на вышеуказанные особенности, наблюдалась общая тенденция, заключающаяся в том, что в событиях с большими  $S$  часто появляются события с большим поперечным импульсом  $p_T^{\max}$ .

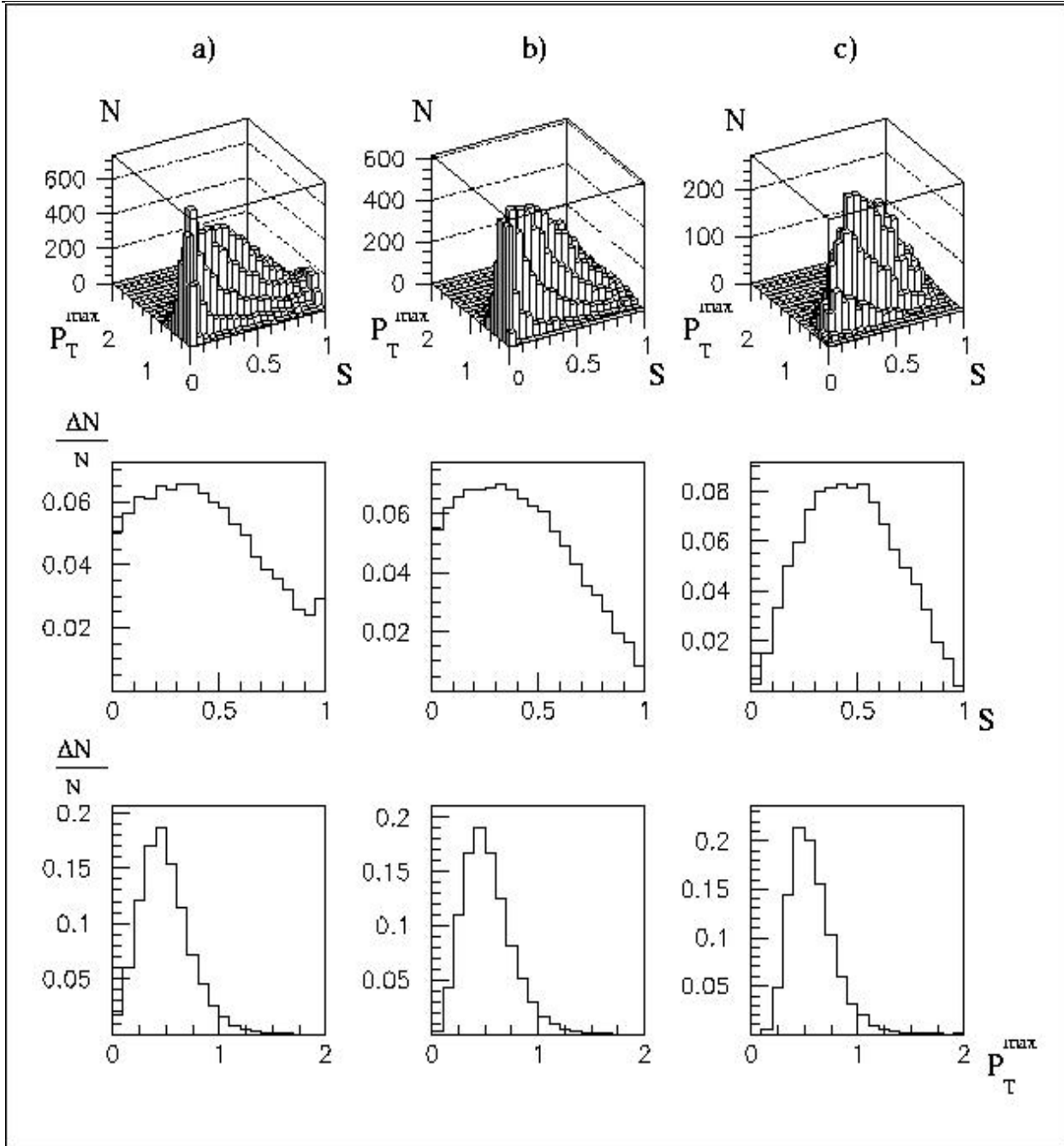


Рис. 3. Зависимость сферисити от максимального поперечного импульса частиц и распределения  $S$  и  $p_T^{\max}$ , вычисленных с учетом только мезонов, в неаннигиляционных  $\bar{p}p$ -взаимодействиях при 22,4 ГэВ/с : а) – данные для событий с множественностью  $n \geq 2$ ; б) -  $n \geq 4$ ; в) -  $n \geq 6$ .

В таблице 1 приведены количество событий  $N$ , средние значения  $\langle S \rangle$  и  $\langle p_T^{\max} \rangle$  для групп событий с множественностями  $n \geq 2$ ,  $n \geq 4$  и  $n \geq 6$  в событиях  $\bar{p}p$ -аннигиляции и неаннигиляционных  $\bar{p}p$ -взаимодействиях.

Таблица 1. Значения  $N$ ,  $\langle S \rangle$  и  $\langle p_T^{\max} \rangle$  при 22,4 ГэВ/с

Реакция	Множественность $n$	$N$	$\langle S \rangle$	$\langle p_T^{\max} \rangle$
$\bar{p}p \rightarrow n\pi K(\pi^+\pi^-)X^0$	$\geq 2$	12433	$0,497 \pm 0,014$	$0,503 \pm 0,014$
	$\geq 4$	8056	$0,501 \pm 0,017$	$0,548 \pm 0,018$
	$\geq 6$	4133	$0,526 \pm 0,025$	$0,571 \pm 0,027$
$\bar{p}p \rightarrow \bar{p}pK(\pi^+\pi^-)X^0$ заряж. мезоны	$\geq 2$	10470	$0,324 \pm 0,010$	$0,182 \pm 0,010$
	$\geq 4$	10470	$0,324 \pm 0,010$	$0,182 \pm 0,010$
	$\geq 6$	1679	$0,435 \pm 0,032$	$0,427 \pm 0,031$

*Nuclear Physics*

$\bar{p}p \rightarrow \bar{n}p\pi^- K(\pi^+\pi^-)X^0$ $\rightarrow n\bar{p}\pi^+ K(\pi^+\pi^-)X^0$ заряж. мезоны	$\geq 2$	22976	$0,398 \pm 0,008$	$0,367 \pm 0,007$
	$\geq 4$	14459	$0,405 \pm 0,010$	$0,478 \pm 0,012$
	$\geq 6$	6095	$0,444 \pm 0,017$	$0,543 \pm 0,021$
$\bar{p}p \rightarrow ANN$	$\geq 2$	12275	$0,365 \pm 0,010$	$0,704 \pm 0,019$
	$\geq 4$	10203	$0,385 \pm 0,011$	$0,727 \pm 0,021$
	$\geq 6$	7247	$0,424 \pm 0,015$	$0,740 \pm 0,026$
$\bar{p}p \rightarrow NAN$ заряж. частицы	$\geq 2$	50563	$0,211 \pm 0,003$	$0,552 \pm 0,007$
	$\geq 4$	32985	$0,233 \pm 0,004$	$0,598 \pm 0,010$
	$\geq 6$	11907	$0,322 \pm 0,009$	$0,629 \pm 0,017$
$\bar{p}p \rightarrow NAN$ заряж. мезоны	$\geq 2$	35409	$0,433 \pm 0,007$	$0,498 \pm 0,008$
	$\geq 4$	32985	$0,403 \pm 0,007$	$0,524 \pm 0,009$
	$\geq 6$	11907	$0,471 \pm 0,013$	$0,575 \pm 0,016$

Средние значения  $\langle S \rangle$  и  $\langle p_T^{\max} \rangle$  слабо зависят от множественности в событиях антипротон – протонной аннигиляции, но они увеличиваются с ростом множественности в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях; при этом средний поперечный импульс  $\langle p_T^{\max} \rangle$ , определенный только мезонами, меньше, чем поперечный импульс, вычисленный по всем заряженным частицам.

Наибольшее среднее значение сферичности наблюдается у мезонов из событий неаннигиляционного типа, когда исключены данные по протону и антипротону, а наибольшее среднее значение  $\langle p_T^{\max} \rangle$  наблюдается в событиях, сопровождающейся антипротон – протонной аннигиляцией.

**Заключение.**

В результате проведенных исследований установлено, что распределение по переменной сферичности в событиях, сопровождающихся антипротон – протонной аннигиляцией, сильно отличается от распределения, полученного для неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействий, что качественно предсказывается кварк – партонной моделью.

Обнаруженный новый эффект – увеличение сферичности мезонов в неаннигиляционных  $\bar{p}p$  - взаимодействиях окажется существенным в создании теоретической модели сильных взаимодействий.

**Литература**

1. Chew G., Rozenzweig. // Rhys. Rep. C41, p. 263, 1978.
2. Гришин В.Г. и др. // Ядерная физика т. 37, стр. 915, 1983.
3. Sukhatme U. // Phys. Rev. Lett. v. 45, p.5, 1980.
4. Capella A. et al. // Phys. Lett. B81, p. 68, 1978.
5. Боос Э.Г., Темиралиев Т. и др. // Известия МОН – НАН РК, серия физ. – мат., № 2, стр. 35, 2000.

**АНАПОЛЬНЫЙ И ТОРОИДНЫЙ МОМЕНТЫ В СОВРЕМЕННОЙ ФИЗИКЕ**

В.М. Карташов

*Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан*

Вскоре после экспериментального обнаружения нарушения пространственной четности при  $\beta$ - распаде В.Г. Вакс и Я.Б. Зельдович обратили внимание на возникновение при этом в переходящей в себя при зеркальном отражении системе своеобразного распределения магнитного поля: оно выглядит как поле, возникающее в тороидальной обмотке с током и отличается от полей обычных электромагнитных мультиполей: диполей, квадрупольей и т.д. Такой источник электромагнитного поля по предложению А.С. Компанейца был назван анаполем [1]. Это можно пояснить следующим образом.

Если к состоянию  $s_{1/2}$  в силу слабого взаимодействия примешивается состояние  $p_{1/2}$ , то это можно отразить на языке нерелятивистских волновых функций так. Для  $s_{1/2}$  – состояния функцию можно записать в виде:

$$\psi_0 = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} R_0(r) \chi \tag{1}$$

где  $R_0(r)$  – радиальная функция  $s$ - состояния, а  $\chi$  – двухкомпонентный спинор, описывающий спиновое состояние электрона. Волновая же функция состояния  $p_{1/2}$  будет таковой:

$$\psi_1 = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} R_1(r) (-\vec{\sigma}\mathbf{n}) \chi \tag{2}$$

Возникающая же в результате смешивания волновая функция будет выглядеть таким образом:

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} [R_0(r) - i\eta R_1(r) \bar{\sigma} \mathbf{n}] \chi \quad (3)$$

Мнимый коэффициент смешивания  $i\eta$  – следствие T – инвариантности слабого взаимодействия. Волновую функцию (3) можно переписать так:

$$\psi = \frac{1}{\sqrt{4\pi}} R_0(r) (1 - i\eta \bar{\sigma} \mathbf{n}/2) \chi \quad (4)$$

Видно, что возникшая примесь эквивалентна локальному повороту спинора  $\chi$  в исходном выражении (1) на малый угол:

$$\mathcal{G}(r) = 2\eta R_1(r)/R_0(r) \quad (4a)$$

вокруг направления  $\mathbf{n}$  (или повороту локальной системы координат на угол  $-\theta$ ).

Если в исходном состоянии  $s_{1/2}$  спин был направлен вдоль оси z, то мере удаления от начала координат  $r=0$  (а  $R_1(0) = 0$ ) в плоскости  $xu$  у спина появляется проекция на эту плоскость, направленная по касательной к окружности. Возникающая конфигурация (рис. 1) есть не что иное, как спиновая спираль.



Рис. 1 Спиновая спираль

Знак этой спирали (правая она или левая) не зависит от того, как именно ориентирован спин при  $r=0$ . Именно поэтому той же спиралью характеризуется и неполяризованное состояние атома. Ясно, что и магнитный момент электрона приобретает вместе с его спином компоненту, лежащую в плоскости  $xu$ . Подобная компонента возникает и у создаваемого электроном магнитного поля. Что же касается распределения тока в такой системе, то наряду с обычным циркулярным током, протекающим в плоскости, ортогональной моменту, имеется компонента, соответствующая току в обмотке, навитой на тор (рис. 2).

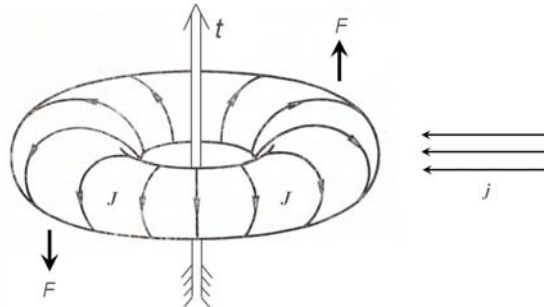


Рис. 2 Конфигурация токов, создающих тороидный момент

Внешний ток  $J$  проникая в тор, создает вращающий механический момент  $\mathbf{K} = \mu[\mathbf{t}\mathbf{j}]$ , где  $\mu$  – магнитная постоянная,  $\mathbf{t}$  – дипольный тороидный момент,  $\mathbf{j}$  – плотность внешнего тока.

Атом, имеющий такую структуру, спиновую спираль, по-разному взаимодействует с право- и левополяризованным светом, подобно хорошо известной молекуле сахара, обладающей спиральной структурой в обычном смысле слова. Но между ними есть разница: молекулы сахара имеют две формы, правую и левую, а атомы – только одну.

В [2] была выяснена суть третьего семейства мультипольных моментов и дано название тороидного дипольного момента первому члену соответствующего разложения. Авторы в [2] показали, что тороидный дипольный момент более «физичная» характеристика, чем анаполь, так как по всем его свойствам он более отвечает простому классическому аналогу - «точечному» тороидальному соленоиду, который указывался сначала для анаполя. При мультипольном подходе анаполь оказался составной величиной: разностью первой производной по времени от электрического дипольного момента и тороидного дипольного момента, заданных в одной точке и направленных по одной оси. В связи с этим анаполь не может характеризовать переходный процесс (например, превращение тяжелой частицы в легкую с испусканием фотона, переход ядра из одного возбужденного состояния в другое и т.д.). А это

порождает большую путаницу в литературе. Именно поэтому третьей дипольной характеристикой в электромагнитном токе должен приниматься только тороидный дипольный момент.

Обоснованность введения этой характеристики микромира подтверждена экспериментально. Например, для ряда ядер разными методами определены ее значения, хорошо согласующиеся с теоретически ожидаемыми [3,4].

В математике различные режимы точечных динамических систем классифицируются по типу поведения. Теория бифуркаций (разветвлений), анализ устойчивости стационарных решений и теория катастроф позволяют исследовать поведение нелинейных динамических систем, далеких от равновесия, при изменении их параметров. Сегодня для сосредоточенных систем известны стационарные состояния в виде периодических, квазипериодических и хаотических колебаний, математическим выражением которых служат предельный цикл, тор и странный аттрактор.

В 1986 г. Дубовик В.М. с сотрудниками ввели понятие тороидного диполя электрического происхождения как замкнутой круговой цепочки электрических диполей. Тем самым были определены уже четыре фундаментальные поляризации в рамках электродинамики сплошных сред: электрическая, магнитная, полярная тороидная и аксиальная тороидная. Развитие электродинамики тороидных моментов привело к тому, что электромагнетизм как теория, описывающая среды, превратилась, по сути, в электро-тороидо - магнетизм, а ряд магнитных кристаллов, обладающих магнитоэлектрическими свойствами, кристаллографы стали называть тороиками [5].

В ядерной физике, например, ожидаемые эффекты нарушения С,-Р,-Т- симметрий в поляризованном упругом электрон - протонном (электрослабом) рассеянии считаются с учетом тороидного и электрического дипольных моментов [8,9]. Можно привести и множество других примеров учета этой характеристики в планировании ядерных экспериментов. Корюкин В.М. [6] пытается из анализа эффекта Казимира, уязвляемого с квантовой гравитацией, и реликтовыми нейтрино, найти новую возможность ограничения выбора сценария развития Вселенной и дает в то же время оценку соотношения между тороидным моментом нейтрино, гравитационной и ферми - постоянными.

Уже имеются примеры объяснения особенностей материалов, используемых в новых информационных технологиях, их тороидными свойствами [7].

Несомненно, все это свидетельствует об актуальности исследования тороидных моментов в фундаментальных и прикладных задачах современной физики.

В физике нейтрино до сих пор нет ответов на самые фундаментальные вопросы теории нейтрино: какой природы является эта частица, дираковской или майорановской, каковы массы у нейтрино различных ароматов и, наконец, какие у них электромагнитные свойства. В принципе дираковское нейтрино может иметь магнитный и электрический дипольный моменты. В 1972 году Л.Б. Окунь и И.Ю. Кобзарев впервые установили: если нейтрино майорановская частица, то её единственной электромагнитной характеристикой является тороидный дипольный момент.

Изучение аномальной конверсии в ядрах редкоземельных элементов привело к определению значений как переходных дипольных тороидных моментов (таблица 1), так и статических (таблица 2). В таблице 1 приведены значения ядерного параметра  $\lambda^{(2)}$  в обозначении М.Е. Войханского и М.А. Листенгартена. Значения переходных и статических моментов определялись по их же формулам. Полученные значения статических дипольных тороидных моментов определялись из анализа аномальных КВК М1-переходов внутри ротационной полосы и сравнивались с модельными расчетами для нечетных деформированных ядер. Наилучшее согласие экспериментального значения тороидного момента  $^{183}\text{W}$  с расчетным получается при учете отмеченных нами [10] особенностей формы и знака деформации для ядра  $^{182}\text{W}$  из анализа несущих информацию о форме ядер параметров смешивания и силового для Е0-переходов. Приведенное в таблице 2 литературное значение тороидного момента для сферического ядра  $^{133}\text{Cs}$ , полученное методами лазерной спектроскопии, хорошо совпадает с рассчитанным.

В таблице 2 указаны также наши экспериментальные значения и рассчитанные А.П. Фересиным для безразмерного параметра  $K_a$ , характеризующего электромагнитное взаимодействие орбитального электрона с тороидным моментом ядра. Им же рассчитаны для некоторых ядер и отношении параметра  $K_\sigma$ , зависящего от спина ядра, характеризующего слабое взаимодействие атомного электрона с нуклонами, обусловленное слабыми нейтральными токами, к параметру  $K_a$ .

Видно, что статические тороидные моменты на несколько порядков меньше переходных дипольных тороидных моментов в этих ядрах и, по меньшей мере, на порядок расходятся с рассчитанными для большинства из этих ядер, что, вероятно, можно объяснить чувствительностью оценок к выбору параметров потенциала и конфигурации.

Таблица 1. Экспериментальные величины дипольных тороидных моментов ядерных переходов

Ядро	$I_i^\pi \rightarrow I_f^\pi$	$E_\gamma$ , кэВ	$ \langle U_\gamma \rangle _s \cdot 10^3$	$\lambda_s^{(2)}$	$ t_{1s} _{\text{я.м.ф.м.}}$
$^{169}\text{Tm}$	$7/2^- \rightarrow 7/2^+$	63,12	18,3(4)	-40(25)	0,040(25)
	$7/2^- \rightarrow 7/2^+$	240,33	0,15(1)	300(40)	0,04(1)
$^{173}\text{Yb}$	$7/2^+ \rightarrow 9/2^-$	171,40	26,5(5)	-20(7)	0,5(2)
	$7/2^+ \rightarrow 7/2^-$	271,97	30,8(5)	41(13)	1,2(4)
	$7/2^- \rightarrow 7/2^+$	285,32	23,4(5)	88(34)	2,0(6)
	$7/2^+ \rightarrow 5/2^-$	350,67	3,1(2)	270(100)	0,8(3)
$^{175}\text{Lu}$	$9/2^- \rightarrow 9/2^+$	282,6	7,8(5)	-410(35)	3,2(5)
	$9/2^- \rightarrow 7/2^+$	396,32	6,2(2)	650(30)	3,5(3)
$^{177}\text{Hf}$	$9/2^+ \rightarrow 9/2^-$	208,34	62,5(5)	35,3(170)	2,1(11)
	$9/2^+ \rightarrow 7/2^-$	321,32	4,8(2)	1020(50)	4,6(4)
$^{182}\text{W}$	$2^- \rightarrow 2^+$	67,75	215(5)	-20(20)	4(4)
	$3^- \rightarrow 2^+$	152,43	8,9(2)	-140(70)	1,2(6)

Таблица 2. Значения тороидных моментов ядер ряда нуклидов

Ядро	Значение тороидного момента ядра $t_1, \text{я.м.фм.}$		$K_a^3$	$K_a^p$	$(K_a^p/K_a^3)^p$
	Экспериментальное	Расчетное			
$^{133}\text{Cs}$	$1,3(2) \cdot 10^{-6}$	$1,14 \cdot 10^{-6}$	0,18(3)	0,16	-
$^{169}\text{Tm}$	$2,0(7) \cdot 10^{-5}$	$8,8 \cdot 10^{-6}$	0,9(3)	0,41	-
$^{175}\text{Lu}$	$4(1) \cdot 10^{-4}$	$1,1 \cdot 10^{-5}$	56(14)	2,8	0,10
$^{173}\text{Yb}$	$5,2(25) \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-6}$	5,6(27)	0,22	1,4
$^{177}\text{Hf}$	$-2,3(3) \cdot 10^{-6}$	$-1,0 \cdot 10^{-6}$	-0,32(4)	-0,14	0,9
$^{183}\text{W}$	$8(5) \cdot 10^{-8}$	$3,7 \cdot 10^{-7}$	0,004(2)	0,017	-

Обсуждаемые ядерно-спектроскопические эксперименты показали также, что в радиоактивных оксидах редкоземельных элементов при определенных условиях наблюдается сегнетизация диэлектриков [11].

Сегнетоэлектрик - это диэлектрик или полупроводник, обладающий в определенном диапазоне температур спонтанной поляризацией. При понижении температуры в сегнетоэлектрике происходит фазовый переход, связанный с искажением кристаллической структуры, что приводит к появлению спонтанной поляризации. Спонтанная поляризация сегнетоэлектрика легко изменяется под влиянием внешних воздействий, в частности, при приложении электрического поля. Это свойство сегнетоэлектриков используется для создания энергонезависимых (т.е. информация сохраняется и в случае, когда устройство выключено) запоминающих устройств. Компьютеры, мобильные телефоны, цифровые камеры, фотоаппараты - потенциальный рынок для сегнетоэлектрической памяти практически необъятен, и потому настоятельной необходимостью является миниатюризация запоминающих устройств на основе сегнетоэлектриков.

В связи со стремлением к повышению плотности записи информации исследование свойств сегнетоэлектрических наноразмерных частиц и пленок привлекает значительное внимание учёных. Долгое время считалось, что в тонких сегнетоэлектрических плёнках и в наночастицах спонтанная поляризация отсутствует из-за расположенных на поверхности нескомпенсированных зарядов, которые создают деполяризующее поле. Однако совсем недавно было экспериментально показано, что пленки титаната свинца нанометровой толщины демонстрируют сегнетоэлектрические свойства.

Американские ученые сосредоточили свое внимание на другом типе сегнетоэлектрических наноструктур - «нанодисках» и «наностержнях» (характерные размеры таких наночастиц - несколько нанометров, синтезировать их можно методами коллоидной химии). Они провели теоретическое рассмотрение свойств наночастиц из твердого раствора  $\text{PbZr}_{0,5}\text{Ti}_{0,5}\text{O}_3$ , и получили довольно интересные результаты. Как показало моделирование, наночастицы действительно не должны обладать спонтанной поляризацией даже при малых температурах, однако фазовый переход всё же имеет место. При температуре ниже определённой, критической температуры (она достаточно высока – более 500 К) происходит упорядочение локальных электрических диполей – они выстраиваются «по кругу» и в результате наночастица обладает ненулевым тороидным моментом.

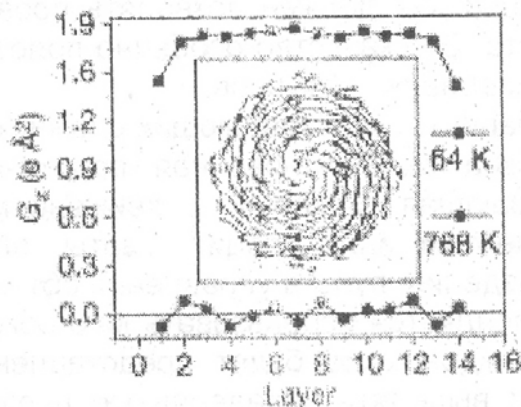


Рис. 3 Кривые показывают вклад в суммарный тороидный момент от каждого монослоя для частицы толщиной 14 монослоев при температурах 64 К и 768 К, на вставке показана картина ориентации локальных диполей в таком нанодиске

«Нанодиски» характеризуются двумя устойчивыми состояниями – когда дипольные моменты ориентированы по часовой стрелке или против часовой стрелки. Такая бистабильность дает возможность создавать запоминающие устройства на основе наночастиц, приписывая одному из состояний значение «0», другому – «1». То, что поляризация наночастицы как целого отсутствует, существенно облегчает задачу увеличения плотности записи. Ведь, поскольку достаточно большое электрическое поле за пределами наночастицы отсутствует, не приходится опасаться неконтролируемого взаимодействия достаточно близко расположенных наночастиц посредством электрического поля. Более того, для переключения состояния наночастицы из одного состояния в другое можно применять переменное



магнитное поле, а это не требует нанесения контактных электродов, которые необходимы в существующих запоминающих устройствах (в них переключение состояния бита с помощью приложения статического электрического поля). Результаты американских ученых дают надежду на резкое повышение плотности записи информации. В пределе, который все же вряд ли будет достигнут, плотность записи в запоминающих устройствах на основе сегнетоэлектрических наночастиц может достичь  $60 \times 10^{12}$  бит на квадратный дюйм. Это примерно на пять порядков выше, чем достигнуто в лучших существующих образцах (0,2 Гбит на квадратный дюйм).

**Литература:**

1. Хриплович И.Б. // УФН. 1997. - Т. 167, №11. - С. 1213.
2. Дубовик В.М., Чешков А.А. // ЭЧАЯ. - 1974. - Т.5. - С. 791.
3. Карташов В.М., Троицкая А.Г. // Изв. РАН. сер. физ. – 2009. – Т.73, №2. – С.253.
4. Wood C.S. et al. // Science. 1997. – Vol.275. – P. 1759.
5. Букина Е.Н., Дубовик В.М. // Журнал технической физики. 2001. - Т.71, №2. - С.1.
6. Корюкин В.М. // Изв. высших уч. заведений. Физика. - 1996. - №10. - С.119.
7. Naumov Ivan I. et al. // Nature. - 2004. - Vol.432. - P.737.
8. Керимов Б.К., Сафин М.Я. // Ядерная физика. 2009. - Т.72, №11. - С.2022
9. Керимов Б.К., Сафин М.Я. // Изв. РАН. серия физ. - 2010. - Т.74, №6. - С.854
10. Карташов В.М., Оборковский А.И., Троицкая А.Г. // Изв. АН СССР. сер. физ. – 1990. – Т.54. – С. 169.
11. Материалы международных симпозиумов «Порядок, беспорядок и свойства оксидов» ODPO – 2002 и ODPO – 2003 (Ростов-на-Дону. Россия. Сентябрь 2002г. и 2003г.) // Изв. РАН. сер. физ. – 2003. – Т.67, №7. и 2004. – Т.68, №5.

## АНИЗОТРОПИЯ СОЛНЕЧНЫХ КОСМИЧЕСКИХ ЛУЧЕЙ

Чебакова Е.А.

*Казахский национальный университет им. аль-Фараби*

*Проведено исследование N-S асимметрии солнечных космических лучей (СКЛ) для 16 вспышек, произошедших с 1997 по 2006 гг. Расчет N-S асимметрии проводился на основе данных нейтронных мониторов (НМ) мировой сети станций. Установлено, что в отдельных событиях N-S асимметрия может менять знак и быть равной нулю.*

Одной из важнейших сторон проблемы солнечно-земных связей является прогноз и диагностика радиационной обстановки на орбите Земли во время вспышек на Солнце. Во время хромосферных вспышек на Солнце генерируются потоки заряженных частиц и интенсивность космического излучения на орбите Земли возрастает в сотни и тысячи раз. Наиболее мощные вспышки наблюдаются в периоды, близкие к максимумам солнечной активности. Однако, и во время малых вспышек генерируются частицы с энергиями вплоть до  $10^{11}$  эВ, дающие хотя и слабый, но наблюдаемый эффект на поверхности Земли. В основном потоки солнечных космических лучей (СКЛ) состоят из протонов, хотя для отдельных случаев наблюдается и возрастание потоков тяжелых ядер. Ценную информацию об электромагнитных и радиационных условиях в околосолнечном, межпланетном и околоземном космическом пространстве дает изучение распределения солнечных космических лучей на основе исследования северо-южной анизотропии.

При изучении анизотропии СКЛ во время вспышек было обнаружено, что существует перпендикулярная составляющая вектора анизотропии, зависящая от межпланетного магнитного поля, т.е. N-S асимметрия.

Явление северо – южной асимметрии заключается в том, что на станциях, асимптотические направления которых образуют существенно различные углы с нормалью к плоскости переднего фронта ударной волны, образованной во время вспышки на Солнце, регистрируются различные значения СКЛ. Наибольшее различие в величине эффектов следует ожидать для станций, расположенных в разных (северном и южном) полушариях Земли.

Для исследования N-S асимметрии использовались данные регистрации интенсивности СКЛ, полученные мировой сетью станций нейтронных мониторов, расположенных в антисимметричных высокоширотных точках в северном и южном полушариях (Таблица 1).

Таблица 1

Список станций нейтронных мониторов

Название станции НМ	Географическая широта, град.	Географическая долгота, град	Жесткость геомагнитного обрезания, ГВ
Oulu	65.06N	25.47E	0.77
Sanae	70.31S	2.40W	0.91
Thule	76.50N	68.70W	0.00
McMurdo	77.90S	166.60E	0.00

В 23 цикле солнечной активности наблюдалось 16 солнечных протонных событий, зарегистрированных наземными приборами, характеристики которых представлены в Таблице 2. В таблице 2 указаны номер, дата, координаты и начало вспышки в H<sub>α</sub>-линии.

Таблица 2

№	Дата	Координаты вспышки	Начало вспышки в H <sub>α</sub> - линии, (UT)
55	06.11.1997	S18 W63	11:49
56	02.05.1998	S15 W15	13:31
57	06.05.1998	S11 W65	07:58
58	24.08.1998	N30 E07	21:50
59	14.07.2000	N22 W07	10:03
60	15.04.2001	S20 W85	13:19
61	18.04.2001	S20 W115	02:11
62	04.11.2001	N06 W18	16:03
63	26.12.2001	N08 W54	04:32
64	24.08.2002	S20 W85	00:50
65	28.10.2003	S16 E08	09:51
66	29.10.2003	S15 W02	20:37
67	02.11.2003	S14 W56	17:05
68	17.01.2005	N14 W24	09:30
69	20.01.2005	N14 W61	06:36
70	13.12.2006	S06 W23	02:18

Для определения амплитуды N-S асимметрии была использована расчетная формула:

$$A_{N-S} = (A_N - A_S) \tag{1}$$

где  $A_N = 100\% \cdot (N_{IN} - \langle N_N \rangle) / \langle N_N \rangle$  - амплитуда возрастания интенсивности СКЛ на станции в северном полушарии Земли, где  $N_{IN}$  - 5-минутные значения интенсивности СКЛ,  $\langle N_N \rangle$  - средние значения интенсивности СКЛ, полученные на этой станции до начала возрастания.  $A_S = 100\% \cdot (N_{IS} - \langle N_S \rangle) / \langle N_S \rangle$  - амплитуда возрастания интенсивности СКЛ на станции в южном полушарии Земли, где  $N_{IS}$  - 5-минутные значения интенсивности СКЛ,  $\langle N_S \rangle$  - средние значения до начала возрастания интенсивности СКЛ, полученные на этой станции [1].

На рис.1 приведены значения N-S асимметрии для ряда событий 23 цикла солнечной активности.

Анализ результатов расчета N-S асимметрии показал, что для событий 06.11.1997, 14.07.2000, 15.04.2001, 04.11.2001, 26.12.2001, 28.10.2003, 29.10.2003, 02.11.2003, 20.01.2005 - отрицательна, а для событий 24.08.1998, 13.12.2006 - близка к нулю. В большинстве событий 23 цикла солнечной активности наблюдается отрицательная анизотропия СКЛ. Можно предположить, что это обусловлено радиальными градиентами плотности СКЛ.

Имея в распоряжении данные об N-S-асимметрии СКЛ и привлекая данные по межпланетному магнитному полю, можно рассчитать радиальные градиенты плотности СКЛ. Дело в том, что анизотропия космического излучения (КИ) может быть записана [2]

$$A = \frac{\rho_L}{B} [\vec{B} \times \vec{G}] = \frac{R}{B^2} [\vec{B} \times \vec{G}] \tag{2}$$

где  $A$  - анизотропия КИ,  $\rho_L$  - ларморовский радиус,  $R$  - жесткость,  $B$  - магнитное поле,  $G$  - градиент плотности КИ. Анизотропию удобно выражать в %,  $G$  - в %/а. е.

Записывая уравнение (2) для восточно-западной и северо-южной компонент анизотропии, можно получить удобные для применения соотношения между радиальным градиентом и анизотропией:

$$G_r = - \frac{A_{NS} \cdot B^2}{R \cdot B_y} \tag{3}$$

где  $B_y$  - y-составляющая межпланетного магнитного поля (ММП).

Кроме того, на анизотропию может влиять направление межпланетного магнитного поля. Исследуя временную динамику анизотропной оси, было получено, что в течение одного события происходит изменение направления на источник. Можно предположить, что такое поведение анизотропии связано с возмущениями межпланетного магнитного поля [3].

Магнитное поле Солнца, вмороженное в плазму солнечного ветра, выносится в межзвездное пространство на расстояние до 100 а.е. и образуют межпланетное магнитное поле. Силовые линии регулярной части межпланетного магнитного поля, вследствие собственного вращения Солнца, представляют собой спирали Архимеда, пересекающие орбиту Земли под углом  $\theta = 45^\circ$ . Спиральное поле в области низких гелиоширот состоит из нескольких секторов с попарно противоположным направлением силовых линий [4]. Секторы магнитного поля на поверхности Солнца представляют собой области с преобладанием поля одного знака. По широте секторы простираются на  $\sim 35^\circ$  по обе стороны от экватора. Протяженность одного сектора по долготе  $\sim 90^\circ$  при четырехсекторной структуре. Положительными секторами принято называть сектора с направлением поля от Солнца, а отрицательными - к Солнцу. Сектора с положительной и отрицательной направленностью поля отделены "тонким" токовым слоем, внутри которого вектор магнитного поля чаще всего поворачивается от одного

направления к другому, оставаясь в одной плоскости, или магнитное поле в нем принимает нулевое значение. Основание токового слоя берет свое начало на Солнце и выносится плазмой солнечного ветра в межпланетное пространство. Вследствие вращения Солнца вокруг своей оси, конфигурация токового слоя представляет сложную картину, напоминающую волнистую юбку балерины закрученную в спираль.

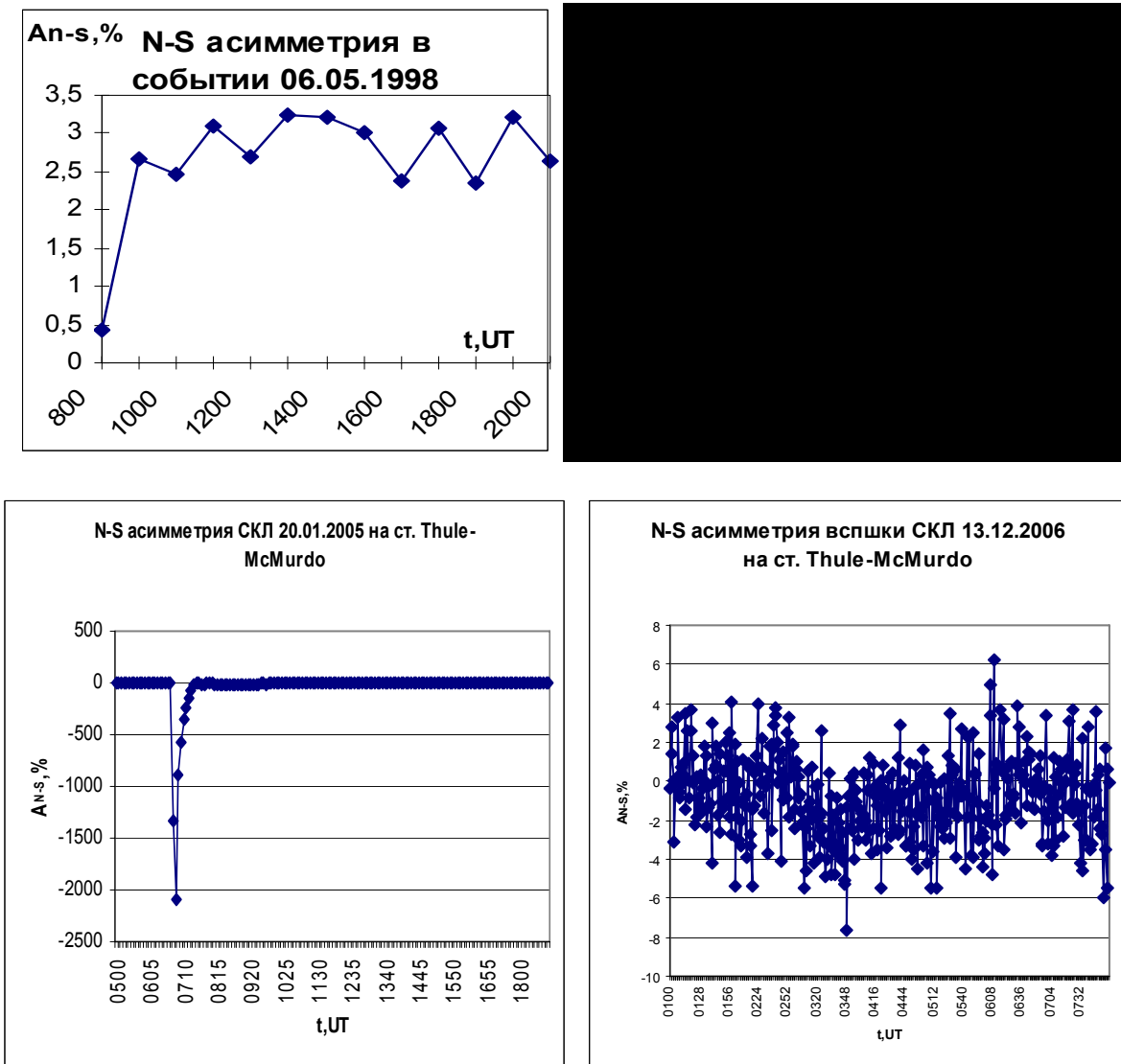


Рис. 1 N-S асимметрия для вспышек 06.05.1998, 15.04.2001, 20.01.2005, 13.12.2006.

Интересным является исследование динамики N-S-асимметрии внутри сектора ММП в различные периоды гелиомагнитного цикла, когда  $\vec{M} \uparrow \downarrow \vec{\Omega}$  или  $\vec{M} \uparrow \uparrow \vec{\Omega}$ , где  $\vec{M}$  и  $\vec{\Omega}$  - магнитный момент и угловая скорость вращения Солнца соответственно. Можно ожидать смены знака N-S-асимметрии при пересечении границы сектора ММП, что объясняется движением заряженных частиц вдоль гофрированного нейтрального токового слоя.

**Литература**

1. Чебакова Е.А. Генерация и распространение солнечных космических лучей. Алматы: Казакуниверситеті, 2005, 195 с., ISBN 9965-12-858-8
2. Bieber. J. W , Pomerantz M.A.. Solar cycle variation of cosmic-ray north-south anisotropy and radial gradient. The Astrophysical Journal, 303,1986, p. 843-848.
3. Чебакова Е.А. N-S асимметрия солнечных космических лучей. Радиационные процессы. Алматы. 2002, с.89-93.
4. Топтыгин И.Н. Космические лучи в межпланетных магнитных полях. М.: «Наука», 1983, 302с.

ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ НУКЛИДА  $^{152}\text{Eu}$  И В НЕТРАДИЦИОННЫХ ЯДЕРНО-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИХ ЭКСПЕРИМЕНТАХ

В.М. Карташов, Д.Н. Калдыбаева, Н.У. Алдияров, Е.З. Ахметов, З.А. Сатбаева  
Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Два стабильных изотопа Eu существуют в природе:  $^{151}\text{Eu}$  и  $^{153}\text{Eu}$ . Нами при высоком разрешении исследовался распад как  $^{152g}\text{Eu}$  ( $T_{1/2}=12,4$  лет), так и  $^{152m}\text{Eu}$  ( $T_{1/2}=9,3$  ч). Окись европия, обогащенная до 98%  $^{151}\text{Eu}$ , облучалась на реакторе. Источники электронного излучения получились распылением в вакууме на алюминиевую подложку облученной окиси. Приготовленные таким образом, они отвечали всем требованиям прецизионной спектроскопии.

Для измерения электронных спектров использовался широкоапертурный  $\beta$  – спектрометр ( $r_0=50\text{см}$ ) с магнитом из железа с двойной фокусировкой на угол  $\pi/2$  [1]. Многолетний опыт его использования показал, что в весьма широком диапазоне энергий - 0÷2000 кэВ – возможно осуществить прецизионные измерения, если достаточно корректно применять во всем диапазоне специальную систему энергетической калибровки, а в самой «мягкой» (околонулевой) области, метод послеускорения электронов. Естественно, что стабильность магнитного поля и его топография должны поддерживаться в процессе таких измерений на высоком уровне. Осуществление прецизионного режима измерения спектров потребовало дополнить установку системой размагничивания. Тщательная энергетическая калибровка спектрометра проводилась по конверсионным линиям  $\gamma$  – переходов в  $^{171}\text{Yb}$ ,  $^{174}\text{Yb}$ ,  $^{174}\text{Lu}$ ,  $^{177}\text{Hf}$  и  $^{137}\text{Ba}$  (рис.1), энергии которых определены с погрешностью  $\leq 3 \cdot 10^{-4}$ .

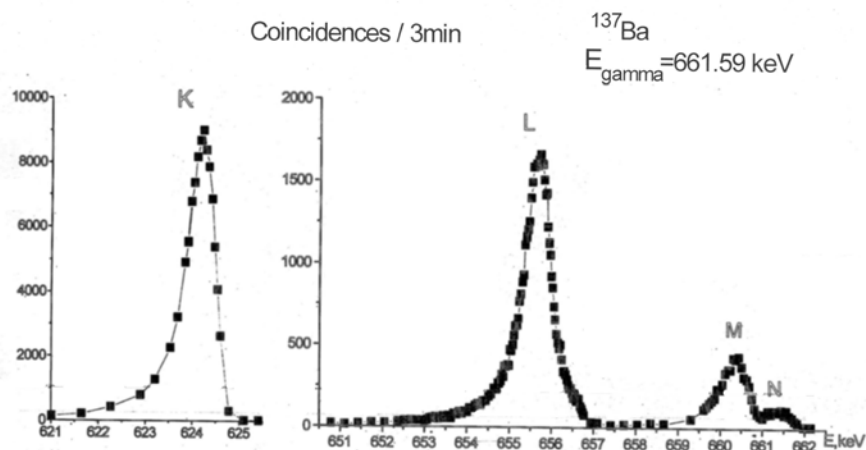


Рис. 1 Спектр электронов внутренней конверсии распада  $^{137}\text{Cs}$

Выполненная энергетическая калибровка в диапазоне 1 кэВ÷1,5 МэВ позволила достичь оптимального соотношения между разрешением и светосилой, сделала возможной во всём диапазоне измерений надёжную регистрацию спектральных линий, отличающихся по интенсивности в  $10^5$  раз (рис. 2).

Это позволило получить наиболее полные и точные сведения о конверсионном и оже – излучении распада  $^{152}\text{Eu}$  и сделало их пригодными к использованию в метрологических целях. Подробные и точные сведения о спектрах радиоактивных изотопов редкоземельных элементов, о полосовых структурах их уровней сделало возможным экспериментальное определение значений новой характеристики микромира – тороидного момента – для ряда ядер редкоземельных элементов. Высокая стабильность поля, позволяющая надёжно воспроизводить повторяемость результатов, дала возможность изучения автокаталитических процессов в форме периодических твёрдофазных реакций, что может иметь не только фундаментальное, но и прикладное значение.

Используя аналог нашего прибора, сотрудники ИЯИ НАН Украины получили очень интересные результаты в исследовании атомно – ядерных процессов на основе измерений сдвигов конверсионных и  $\gamma$  – линий.

К настоящему времени наиболее полные и точные сведения об электронном излучении распада  $^{152g}\text{Eu}$  и  $^{152m}\text{Eu}$  получены именно в ИЯФ НЯЦ РК и в таких условиях эксперимента (рис. 3).

Показано, что полученные конверсионные данные распада  $^{152}\text{Eu}$  (энергии, интенсивности линий ЭВК) в сочетании с литературными данными высокой точности о  $\gamma$  - переходах этого распада могут быть использованы и в метрологических целях и найти иное практическое применение.

Тем не менее некоторые результаты заставляют усомниться в полноте изученных систем уровней из распада  $^{152g}\text{Eu}$ , тем более, что при исследовании с высоким разрешением был обнаружен ряд пока не идентифицированных линий ЭВК. По-видимому, остается необходимость в прецизионном изучении спектра электронного излучения  $^{152g}\text{Eu}$  во всем диапазоне энергий.

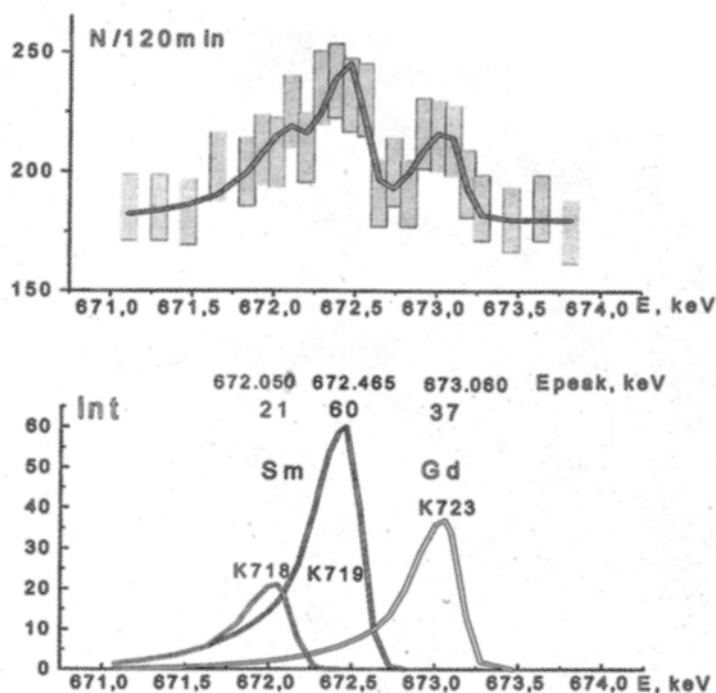


Рис. 2 Пример разложения линий ЭВК участка спектра  $^{152}\text{Eu}$  и  $^{154}\text{Eu}$



Рис. 3 Участки спектра ЭВК распада  $^{152}\text{Eu}$  и  $^{154}\text{Eu}$

Намечается интересный нетрадиционный эксперимент с использованием нуклидов  $^{152\text{m}}\text{Eu}$  и  $^{152\text{g}}\text{Eu}$ . Именно в исследованиях электронов этих распадов было обнаружено смещение в сторону меньшей энергии на величину  $\Delta K=(20\pm 6)$  эВ K - линии перехода  $963,385 \text{ кэВ}(1^- \rightarrow 0^+)$  [1] при распаде состояния  $963,385 \text{ кэВ}$  в  $^{52}\text{Sm}(\text{T}_{1/2}=3 \cdot 10^{-14} \text{ с})$  и  $\Delta L_1=(20\pm 10)$  эВ [2]. Предположено, что смещение является результатом изменения энергии связи K- и  $L_1$ - электронов вследствие значительной ионизации атома, сохраняющейся и в момент разрядки уровня с достаточно малым временем жизни. Значения  $\Delta K$  и  $\Delta L_1$  в пределах погрешностей совпадают.

Экспериментальное значение  $\alpha_K=1,4(7) \cdot 10^{-3}$  и  $\alpha_{L_1}=3,7(24) \cdot 10^{-4}$  для чистого E1-перехода  $963,385 \text{ кэВ}$  допускает величины параметров проникновения  $\lambda_1=+425(12)$  и  $-25 \leq \lambda_1 \leq -2,5$  в предположении  $\lambda_2=0$ , что при малом факторе заторможенности этого перехода  $F_w \approx 100$  противоречит значениям, которые следует из систематики [3]. Возможно, что более точные эксперименты позволят сделать заключение о несоответствии теоретических и экспериментальных значений КВК для обсуждаемого перехода вследствие неучета динамики перестройки оболочки сильно ионизированного атома.

Растущий интерес к изомерным состояниям в ядрах обусловлен, в частности, проблемой их возможных индуцированных распадов [4]. Именно поэтому, обсуждаемые ядра  $^{152}\text{Sm}$  и  $^{152}\text{Gd}$ , имеющие разные равновесные

формы, разные возможности к вхождению в кластерные образования в процессе ядерных превращений и в то же время немалое число электрических монополюсных переходов (чисто электронных), не могут не рассматриваться как кандидаты на их подробное изучение с целью наблюдения в них доказательного проявления этого эффекта с привлечением и других экспериментальных методик.

В схеме уровней  $^{152}\text{Sm}$  из распада  $^{152\text{g}}\text{Eu}$  [6] размещены два перехода  $E_{\gamma} \approx 444$  кэВ, идущие с уровней 1529,806 кэВ ( $2^-$ ) и 810,465 кэВ ( $2^+$ ) на уровни 1085,897 кэВ ( $2^+$ ) и 366,481 кэВ ( $4^+$ ), соответственно. Благодаря высокому разрешению ( $-0,03\%$  по импульсу)  $\beta$ -спектрометра  $\pi\sqrt{2}$  с  $r_0=50$  см нам удалось установить из анализа соответствующих участков конверсионных спектров (K- и L- областей), что этим двум переходам сопутствуют весьма близко по энергии еще два перехода, идущие в  $^{152}\text{Gd}$  [3]. По соотношениям интенсивностей  $L_1$ -,  $L_2$ -,  $L_3$ - линий этих переходов делается предположение о их мультипольностях: E4 и E2.

Таблица: Характеристики компонентов квартета переходов  $E_{\gamma} \approx 444$  кэВ распада  $^{152\text{g}}\text{Eu}$  ( $I_{\gamma}=100$ ,  $I_e^K=100$  для перехода 344,282 кэВ)

Нуклид	$\tau L$	$I_e^K$	K/ $L_1$	$L_1:L_2:L_3$	$I_{\gamma}$
$^{152}\text{Sm}$	E1	2,2(1)	8,4(13)	1:0,07(3):0,08(3)	10,27(11)
	E2	0,5(1)	8,5(20)	1:0,33(5):0,20(4)	1,3(2)
$^{152}\text{Gd}$	E4	1,1(1)	7,0(15)	1:2,0(4):0,8(2)	0,30(3)
	E2	0,40(7)	8,0(25)	1:0,35(10):0,22(10)	0,80(15)

Из относительных интенсивностей K-линий всех четырех переходов, опираясь на их мультипольности, мы получили их относительные  $\gamma$ -интенсивности  $I_{\gamma}$ , отличающиеся между собой более чем на порядок (см. таблицу). Это подтверждает трудность или даже невозможность их разделения в спектре  $\gamma$ -лучей. Имея же хорошо различимые в конверсионном спектре и не сильно отличающиеся между собой по интенсивности K-линии и ряд наиболее сильных L-линий, относящихся к каждому переходу, можно с неплохой точностью установить взаимное энергетическое положение этих переходов. Разность энергий двух переходов в  $^{152}\text{Sm}$  нами определена  $\Delta E = 0,75(15)$  кэВ, аналогично - в  $^{152}\text{Gd}$  -  $\Delta E = 0,45(15)$  кэВ. От меньшего по энергии перехода в  $^{152}\text{Sm}$  (E1-переход с  $E_{\gamma} = 443,976$  кэВ [6]), который дает наибольший вклад в суммарное значение  $I_{\gamma}$  всего квартета переходов меньший по энергии переход в  $^{152}\text{Gd}$  (типа E4) отстоит на 1,2(2) кэВ, и его вклад в интенсивность  $I_{\gamma}$  неразделенной линии квартета составляет всего  $-1/40$ . Опираясь на полученные значения  $\Delta E$  и используя для энергетической калибровки положения конверсионных линий переходов  $E_{\gamma} = 443,976$  кэВ; 482,303(29) кэВ и 488,661(39) кэВ [1], мы получили следующие значения энергии для необнаруженных по  $\gamma$ -спектру переходов:  $E_{\gamma} = 444,5(3)$  кэВ для E2 – перехода в  $^{152}\text{Sm}$ ; 445,1(2) кэВ для E4 и 445,5(3) кэВ для E2 – перехода в  $^{152}\text{Gd}$ .

Таким образом, подробный энергетический анализ областей K- и L – конверсии указанных переходов дает хорошее соответствие положения всех наблюдаемых конверсионных линий полученным интервалам энергий переходов: неточность в их определении значительно меньше самих интервалов и разностей в энергиях связи электронов на K- и L-оболочках Sm и Gd, что еще раз подтверждает правильность отнесения двух (наиболее слабых по  $\gamma$ -лучам) переходов квартета к Gd.

Из опытов по  $\gamma - \gamma$ -совпадениям в [7] впервые было показано, что переход в  $^{152}\text{Sm}$  564,021 кэВ, проявляющийся в распаде  $^{152\text{g}}\text{Eu}$  является дублетным. В [6] компоненты дублета размещены идущими с уровней 1649,927 кэВ ( $2^-$ ) и 684,698 кэВ ( $0^+$ ) на уровни 1085,897 кэВ ( $2^+$ ) и 121,7824 кэВ ( $2^+$ ), соответственно. Во втором случае  $\Delta E_{\text{ур}}$  меньше  $\Delta E_{\gamma}$  на  $\sim 1,1$  кэВ, т.к. эта пара уровней вводилась в [8], исходя, в частности, из наличия в  $\gamma$ -спектре распада  $^{152\text{m}}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 9,27$  ч) перехода с  $E_{\gamma} = 562,93$  кэВ. При исследовании спектра ЭВК распада  $^{152\text{m}}\text{Eu}$  нами наблюдались два пика, идентифицированные как K-линии переходов в самарии с энергиями 564,04(10) и 564,98(10) кэВ и интенсивностями (считая  $I_e^{K344} = 100$ )  $I_e = 0,35(5)$   $I_e = 0,14(13)$ . Взвешенное среднее значение суммарной интенсивности этих переходов по литературным данным составляет  $I_{\gamma} = 1,87(3)$  при  $I_{\gamma}^{344} = 100$ . Если воспользоваться литературным значением  $\delta = 0,07(11)$  для перехода E1+M2 ( $\alpha_K = (2,85-4,00) \cdot 10^{-3}$ ), то с учетом всех погрешностей мультипольность второго перехода будет определяться как E3+(0,02-0,05)M4 ( $\alpha_K(2,7-3,5) \cdot 10^{-2}$ ) или как M1 ( $\alpha_K \approx 1,3 \cdot 10^{-2}$ ). При использовании же литературных данных о соотношении значений  $I_{\gamma}$  компонентов дублета 19(4):1 получим их мультипольности как E1 для одного перехода ( $\alpha_K \approx 2,5 \cdot 10^{-3}$ ) и M3 или E5 для другого ( $\alpha_K \approx 1,2 \cdot 10^{-1}$ ). В любом случае мультипольность типа E2 для одного из этих переходов наименее вероятна.

Отметим, что в схеме распада  $^{152}\text{Pm}$  ( $T_{1/2} = 4,1$  мин) на уровни  $^{152}\text{Sm}$  [6] обращает на себя внимание некоторый разбой в значениях энергий уровня 1680,5 кэВ, с которого заселяется уровень 684,8 кэВ, и ряда переходов, идущих с этого состояния. По-видимому, можно считать неслучайными противоречия в энергиях состояния 684,8 кэВ и некоторых переходов, идущих на него и с него, а также - в их мультипольностях.

Обсуждаемые здесь результаты заставляют усомниться в полноте изученных систем уровней из распада  $^{152\text{g}}\text{Eu}$ , тем более, что при исследовании с высоким разрешением был обнаружен ряд пока еще не идентифицированных линий ЭВК.

В последнее время усиленно обсуждаются экспериментальные и теоретические результаты, указывающие на замкнутость оболочки  $Z=64$ , начало деформации в области  $N=88-90$ , полосы супердеформированных состояний в области масс  $A \approx 150$  [9,10]. Положение и природа изомерного уровня в  $^{152}\text{Gd}$  пока неизвестны, однако мультипольности новых переходов в этом ядре (E4 и E2) не исключают в нем изомерии типа ираст - ловушки. По-

видимому, окончательный ответ на поставленные в нашем исследовании вопросы даст, в частности, прецизионное изучение спектра электронного излучения  $^{152g}\text{Eu}$  во всем диапазоне энергий.

Вопрос о возможности осуществления индуцированного распада ряда ядер ставился и раньше, но эти обсуждения нельзя сравнить с тем ажиотажем, который был поднят в западной печати в 1999-2004 гг. вокруг предполагаемого создания «изомерной» бомбы на основе  $^{178}\text{Hf}$ , не подпадающей под действие существующих договоров о нераспространении. Вещество с запасенной энергией вместе с физическим процессом, осуществляющим её быстрое высвобождение, - две основные составляющие любого взрывного устройства. В случае «гафниевой» бомбы энергия сосредоточена в изомерном состоянии в количестве 2,440 МэВ на ядро, или 1,3 ГДж на 1г вещества. Трудности возникают при поиске способов обеспечения управляемого распада  $^{178m2}\text{Hf}$ . Оптимистичных результатов получено не было ни экспериментально, ни теоретически. Было показано, что производить изомер  $^{178m2}\text{Hf}$  в количестве нескольких граммов и более сегодня крайне сложно. И ажиотаж, поднятый вокруг этой проблемы, основывается на неконкретных экспериментальных данных и отражает, скорее некомпетентность отдельных лиц, чем реальную возможность создания изомерного оружия на базе  $^{178m2}\text{Hf}$  [5].

Но вполне возможно, что в процессе осуществления ядерных экспериментов всё более возрастающей сложности, индуцированный ядерный распад нельзя огульно исключать из вариантности трактовки их результатов.

**Литература:**

1. Карташов В.М., Стахов О.В., Троицкая А.Г., Шевелёв Г.А. // Изв. АН СССР, сер. физ. – 1968. - Т. 32, №14. - С. 682.
2. Булгаков В.В., Гаврилюк В.И., Киришук В.И. и др. // Изв. АН СССР., сер. физ. -1987. - Т.51. - С. 1874.
3. Карташов В.М., Оборковский А.И., Троицкая А.Г. // Изв. АН СССР., сер. физ. - 1990. - Т.54, №9. - С. 1798.
4. Листенгартен М.А. Современные методы ядерной спектроскопии. - Л.: Наука, 1986. - С. 142.
5. Ткаля Е.В. // УФН. - 2005. - Т.175, №5. - С.555.
6. L.K.Peker. // Nucl. Data Sheets. - 1989. - V.58. - P.93.
7. L.L.Riedinger, N.R.Johnson, J.H.Hamilton. // Phys.Rev.C. – 1970. - Vol.2. - P. 2358.
8. J.Barrette et al. // Can. J. Phys. – 1971. - Vol.49. - P.2462.
9. R.F.Casten et al. // Phys. Rev. Lett. – 1981. - Vol.47. - P. 1433.
10. M.A.Bentley et al. // J. Phys. G: Nucl. Part. Phys. – 1991. - Vol.17. - P. 481.

**ВОССТАНОВЛЕНИЕ ВИГНЕРОВСКОЙ  $SU(4)$ -СИММЕТРИИ В ОБЛАСТИ ЯДЕР С НЕЧЕТНЫМ  
МАССОВЫМ ЧИСЛОМ  $A$  И ИЗОСПИНОМ  $T_z \geq 53/2$**

Нурмухамедов А.М., Салихбаев У.С.

*Институт ядерной физики АН Республики Узбекистан, 100214, Улугбек, Ташкент*

*На основе экспериментальных данных по массам ядер в диапазоне массового числа  $5 \leq A \leq 257$  рассчитаны значения фактора Франчини и Радикатти  $R$ , позволяющие оценить степень реализации вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах. Полученное на основе массовой формулы Вигнера выражение для фактора  $R$  зависит от изоспина и учитывает нечетно-четные колебания массовой поверхности. Формула для фактора  $R$  описывает разделение ядер на три группы вигнеровского типа. Проведенный анализ расчетных значений фактора  $R$  методом  $t$ -критерия Стьюдента позволяет утверждать, что нарушенная вигнеровская спин-изоспиновая  $SU(4)$ -симметрия восстанавливается только для ядер с нечетными массовыми числами  $A$  и изоспином  $T_z \geq 53/2$  на уровне значимости  $\alpha = 0.01$ .*

**1. ВВЕДЕНИЕ**

Работа [1] была посвящена уточнению способа вычисления соотношения Франчини и Радикатти, позволяющая за счет чувствительности метода произвести анализ экспериментальных данных масс нуклидов на предмет выполнения вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах. Такой анализ является актуальной по двум причинам: 1) по сравнению с последним анализом [2–5] количество экспериментальных данных по массам ядер существенно увеличилось [6]; 2) разработан чувствительный инструмент, позволяющий вычислять соотношение Франчини и Радикатти с достаточной точностью для последующего анализа.

Целью настоящей работы является оценка степени восстановления вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии для атомных ядер. Для этого рассматриваются экспериментальные значения фактора Франчини и Радикатти  $R$  и проводится их сравнение с теоретическим выражением, полученным в работе [1].

**2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ЗНАЧЕНИЯ ФАКТОРА  $R$**

Для вычисления экспериментальных значений фактора  $R$  воспользуемся следующим выражением

$$R_{\text{экс}} = \frac{M(A, T_z) - M(A, T_z - 2) - \Delta E_{\text{Coul}}(Z, Z + 2)}{M(A, T_z - 1) - M(A, T_z - 2) - \Delta E_{\text{Coul}}(Z + 1, Z + 2)}, \quad (1)$$



где  $\Delta E_{\text{Coul}}(Z, Z + 2)$  – разность кулоновской энергии ядер с изоспинами  $T_z$  и  $T_z - 2$ . В выражении (1)  $M(A, T_z)$  является массой ядра (не нейтрального атома) с массовым числом  $A$  и изоспином  $T_z$ .  $M(A, T_z)$  масса ядра связана с массой нейтрального атома, традиционно приводимая в таблицах (6), следующим соотношением

$$M(Z, N) = M(Z, N)_{\text{атом}} - Zm_e c^2 + B(Z), \quad (2)$$

где  $M(Z, N)_{\text{атом}}$  – масса нейтрального атома;  $Zm_e c^2$  и  $B(Z)$  – суммарная масса и энергия связи связанных в атоме электронов соответственно.

В работе [1] в предположении строгого выполнения вигнеровской симметрии была получена простое выражение для вычисления теоретических значений фактора Франчини и Радикатти, которая имеет вид

$$R_{\text{теор}} = \frac{4(T_z + 1)}{2T_z + 1 + \eta}. \quad (3)$$

В последнем выражении  $\eta = +3$ , если ядро с изоспином  $T_z$  является четно-четным;  $\eta = 0$ , если ядро имеет нечетное массовое число, и  $\eta = -3$ , если ядро является нечетно-нечетным. Как видно из (3), при выполнении вигнеровской симметрии фактор  $R$  зависит только от изоспина  $T_z$  и  $\eta$ . Величина  $\eta$  приводит к разделению кривой  $R_{\text{теор}}$  на три семейства в соответствии с вигнеровским типом ядер, и ее происхождение связано со свободным членом оператора Казимира, учитывающим спаривательный эффект.

Вычисление экспериментальных значений  $R_{\text{эксп}}$  произведено нами на основе выражения (1). При этом для каждого случая была вычислена масса ядра согласно выражению [2].

Погрешности экспериментальных значений величины  $R_{\text{эксп}}$  вычислялись как погрешность косвенных измерений. Средние значения фактора  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  вычислялись как средневзвешенное значение фактора  $R$  для ядер с изоспином  $T_z$ , т.е. как

$$\bar{R}_{\text{эксп}} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i R_i}{\sum_{i=1}^n w_i}, \quad (4)$$

где  $w_i = 1/\Delta R_i^2$  – вес измерения,  $n$  – объем выборки. Погрешность  $\Delta \bar{R}_{\text{эксп}}$  рассчитана как среднеквадратичная.

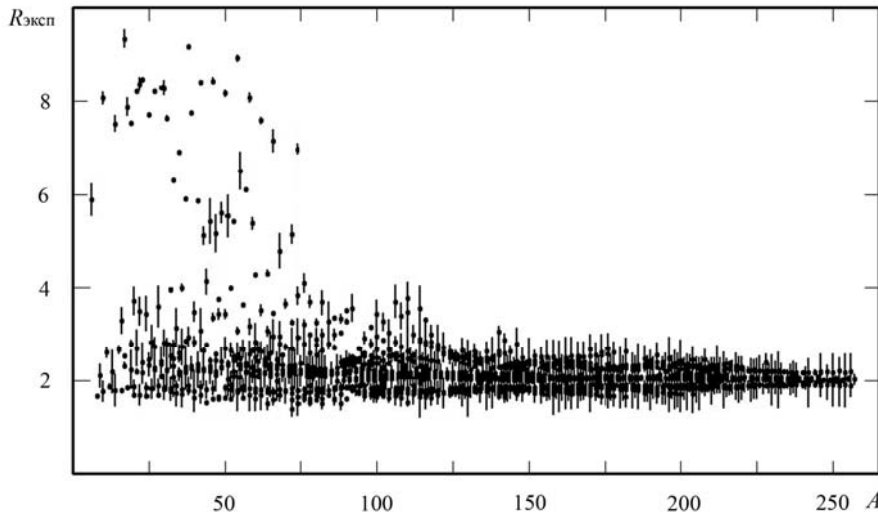


Рис. 1. Зависимость экспериментальных значений фактора  $R_{\text{эксп}}$  от массового числа  $A$ .

Расчет  $R_{\text{эксп}}$  выполнен для всех возможных случаев в диапазоне изменения массового числа  $5 \leq A \leq 257$ .

Рисунок 1 иллюстрирует зависимость экспериментальных значений фактора  $R_{\text{эксп}}$  от массового числа  $A \geq 70$ . Из рис. 1 видно, что экспериментальные значения фактора  $R_{\text{эксп}}$  разбросаны вблизи предельного значения выражения (3) –  $R_{\text{теор}} = 2$ . По мере продвижения в область тяжелых ядер вариация значений  $R_{\text{эксп}}$  уменьшается, что можно интерпретировать как постепенное восстановление вигнеровской симметрии за счет убывания нарушающего влияния спин-орбитального взаимодействия.

На рис. 2 приведена зависимость от массового числа  $A \geq 70$  отношения экспериментальных значений фактора  $R_{\text{эксп}}$  к теоретическим значениям  $R_{\text{теор}}$ , вычисленным по выражению (3). Как видно из рис. 2, отношения  $R_{\text{эксп}} / R_{\text{теор}}$  группируются вокруг  $R_{\text{эксп}} / R_{\text{теор}} = 1$ , хотя наблюдается их значительный разброс.

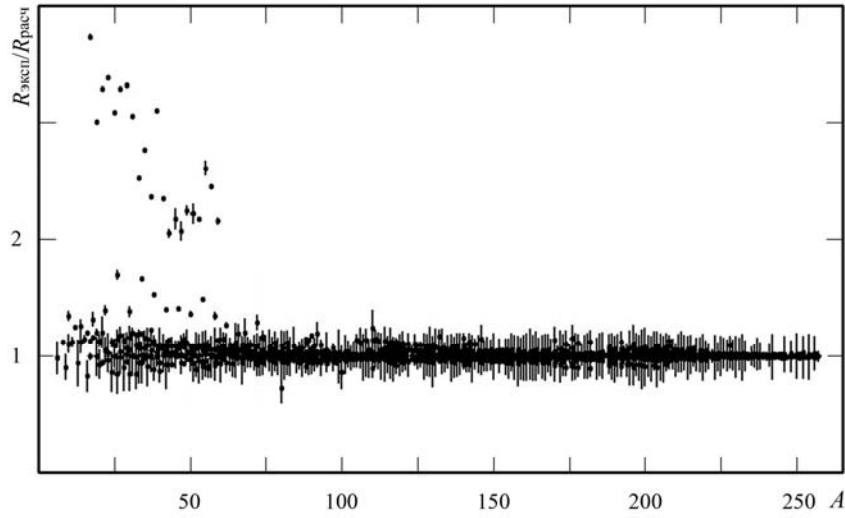


Рис. 2. Зависимость отношения  $R_{\text{эксп}} / R_{\text{теор}}$  от массового числа  $A$ .

Рисунок 3 отражает зависимость  $R_{\text{эксп}}$  от изоспина  $T_z$  для трех групп ядер. На этом рисунке нечетно-нечетные ядра обозначены как  $A = 4n + 2$ , ядра с нечетным массовым числом  $A$  – как  $A = 2n + 1$  и четно-четные ядра – как  $A = 4n$ . Сплошные кривые на рис. 3 являются результатом расчета по формуле (3). Как видно из этого рисунка, выражение (3) правильно описывает разделение экспериментальных значений фактора  $R_{\text{эксп}}$  на три группы ядер вигнеровского типа.

### 3. АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ $t$ -КРИТЕРИЕМ СТЬЮДЕНТА

На основе полученных результатов попытаемся оценить степень реализации вигнеровской  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах. Для этого рассмотрим вопрос о степени согласия между теоретической формулой (3) и экспериментальными средними значениями фактора Франчини и Радикатти  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  для изобары  $T_z$ . Для решения вопроса о случайном или неслучайном расхождении  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  и  $R_{\text{теор}}$  воспользуемся  $t$ -критерием Стьюдента (В. Госсет) [7, 8], имеющего для нашего случая следующий вид:

$$t = \frac{|\bar{R}_{\text{эксп}} - R_{\text{теор}}| \sqrt{n}}{\sigma_{\text{эксп}}}, \tag{5}$$

где  $\sigma_{\text{эксп}}$  – стандартное отклонение,  $n$  – количество экспериментальных данных  $R$  для изоспина  $T_z$ .

Выдвинем нулевую гипотезу, которая имеет вид  $H_0: \bar{R}_{\text{эксп}} = R_{\text{теор}}$ , т.е. между экспериментальным средним значением  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  и теоретическим значением  $R_{\text{теор}}$  наблюдается согласие. В этом случае альтернативная гипотеза имеет вид  $H_1: \bar{R}_{\text{эксп}} \neq R_{\text{теор}}$ . Согласно методике применения  $t$ -критерия Стьюдента [7, 8] нулевая гипотеза на уровне значимости  $\alpha$  имеет место, если  $t < t_{\text{табл}}$ , где  $t_{\text{табл}}$  – табличное значение  $t$ -критерия (см. [7]). Выполнение нулевой гипотезы на уровне значимости  $\alpha$  статистически означает, что для изоспина  $T_z$  экспериментальное значение  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  не значимо отличается от теоретического  $R_{\text{теор}}$  или между  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  и  $R_{\text{теор}}$  имеет место согласие.

Уровень значимости  $\alpha$  выберем как  $\alpha = 0.01$ . Выбранный уровень значимости является высоким и при статистическом анализе с использованием  $t$ -критерия Стьюдента применяется относительно редко. Выбранный нами уровень значимости  $\alpha = 0.01$  определяется важностью вопроса, рассматриваемого в настоящей работе.

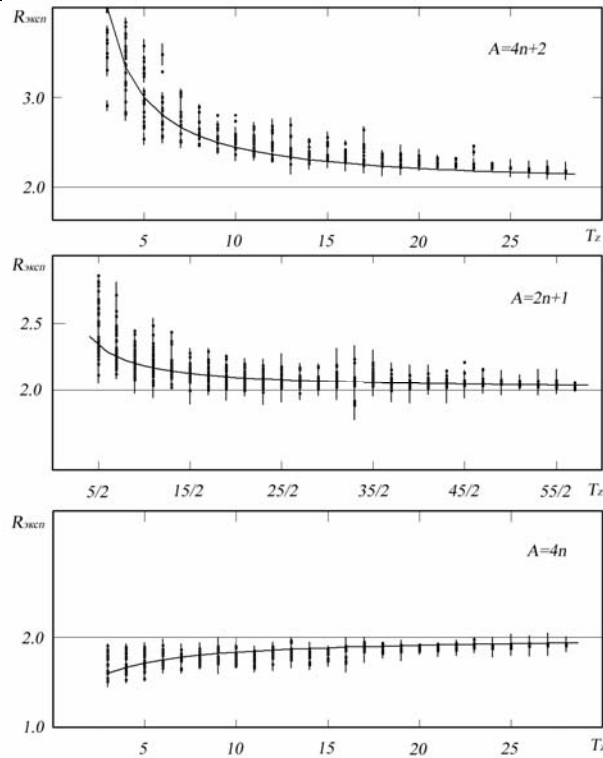


Рис. 3. Зависимость экспериментальных значений фактора  $R_{\text{эксп}}$  от изоспина  $T_z$  для трех групп ядер вигнеровского типа

Сопоставление расчетных и табличных значений  $t$ -критерия Стьюдента [7, 8] для четных массовых чисел  $A$  во всем диапазоне изменения изоспина  $2 \leq T_z \leq 28$  показывает, что  $t > t_{\text{табл}}$ , т.е. выполняется альтернативная гипотеза. Это означает, что на уровне значимости  $\alpha = 0.01$ , статистически, вигнеровская симметрия не реализуется для всех ядер с четными массовыми числами.

Наши расчетные значения  $t$ -критерия Стьюдента для нечетных массовых чисел  $A$  в диапазоне изменения изоспина  $3/2 \leq T_z \leq 51/2$  на уровне значимости  $\alpha = 0.01$  оказались систематически больше в несколько раз, чем табличные, т.е. на уровне значимости  $\alpha = 0.01$  теоретические значения  $R_{\text{теор}}$  и экспериментальные значения  $\bar{R}_{\text{эксп}}$  в указанном диапазоне  $T_z$  не согласуются и вигнеровская симметрия не имеет место.

Для ядер с нечетными массовыми числами и изоспинами  $T_z = 53/2, 55/2$  и  $57/2$  расчетные значения  $t = 0.545, 0.876$  и  $0.660$  и табличные  $t_{\text{табл}} = 3.355, 3.355$  и  $4.032$  соответственно. Как видно, для нечетных атомных ядер с изоспинами  $T_z = 53/2, 55/2$  и  $57/2$  расчетные значения  $t$ -критерия меньше, чем табличные. Этот факт статистически можно интерпретировать как восстановление вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии для тяжелых ядер с изоспинами  $T_z \geq 53/2$  на уровне значимости  $\alpha = 0.01$ .

#### 4. ОБСУЖДЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализируя полученные данные можно прийти к выводу о восстановлении вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в ядрах с нечетным массовым числом  $A$  начиная с нуклидов, изотопический спин которых  $T_z \geq 53/2$ . Ситуация для четно-четных и особенно для нечетно-нечетных ядер иная. Полученные данные позволяют утверждать, что среди реально существующих природных или искусственных четно-четных и особенно нечетно-нечетных ядер вигнеровская симметрия не восстанавливается вовсе, хотя общая тенденция к восстановлению также наблюдается.

Восстановление вигнеровской симметрии означает преобладание среднего расстояния между супермультиплетами  $(T, 0, 0)$  и  $(T-1, 1, 0)$  по отношению к расщеплению уровней самого мультиплета вследствие влияния спин-орбитального взаимодействия (подробно см. [3, 4]). По всей вероятности восстановление происходит быстрее в ядрах с нечетным массовым числом  $A$ , чем в ядрах с четным массовым числом  $A$ .

К отказу от вигнеровской спин-изоспиновой симметрии в атомных ядрах привело открытие в середине XX столетия таких физических факторов как кулоновское взаимодействие, спаривание нейтронов или протонов и спин-орбитальное взаимодействие.

Накопленный обширный экспериментальный материал свидетельствует о том, что кулоновское взаимодействие не разрушает изотопическую симметрию. Открытие аналоговых состояний, а также существующий

обширный экспериментальный материал показывает, что изоспин остается в средних и даже в тяжелых ядрах “хорошим” квантовым числом, т.е. сохраняющейся величиной. Таким образом, кулоновский фактор, как оказалось, не приводит к разрушению изотопической, следовательно, и вигнеровской спин-изоспиновой симметрии.

Существование спаривания между нейтронами и протонами, и экспериментальное отсутствие такового между нейтронами и протонами рассматривалось ранее как свидетельство разрушения вигнеровской симметрии. Но более тщательный анализ показывает [9, 10], что экспериментальное отсутствие спаривания между протоном и нейтроном не может оцениваться как свидетельство разрушения спин-изоспиновой симметрии. Так, в средних и тяжелых ядрах преобладающим взаимодействием между нуклонами является  $jj$  – связь. Как было показано в работе [10], в основном состоянии нечетно-нечетного ядра нечетные протон и нейтрон не могут составить пару, поскольку они имеют различные орбитальные моменты (в рамках модели оболочек) и их волновые функции не могут перекрываться. Иными словами, среди природных и даже среди искусственно получаемых нечетно-нечетных ядер нет таких, в которых выполнялись бы условия для образования пары из протона и нейтрона, имеющие одинаковые орбитальные моменты.

Существующие в настоящее время многочисленные экспериментальные факты [2–5, 9, 10] свидетельствуют в пользу нарушения вигнеровской симметрии только за счет спин-орбитального взаимодействия.

Как известно, не имеется достаточно убедительного теоретического обоснования для введения в средний ядерный потенциал спин-орбитального потенциала [11]. Однако предположение о существовании сравнительно большой спин-орбитальной части в потенциале среднего поля подтверждено многочисленными экспериментальными фактами, прежде всего с расщеплением уровней  $j = l \pm 1/2$ . Другим указанием на важную роль спин-орбитального взаимодействия является экспериментально наблюдаемые поляризационные эффекты при рассеянии нуклонов на ядрах подтверждающих принятую величину потенциала спин-орбитального взаимодействия и его знак.

В то же время спин-орбитальный член ядерного потенциала должен быть поверхностным [11], поскольку в области ядра с постоянной плотностью единственным выделенным направлением является направление импульса нуклона. Поэтому невозможно образовать псевдовектор, который, будучи связан со спином, образовал бы скаляр. В поверхностной области ядра градиентом плотности определяется радиальное направление и можно образовать локальный потенциал вида:

$$V_{sl}(r) \approx \nabla \rho(r) \times \bar{\rho} \cdot \bar{s} = \hbar^{-1} (\bar{l} \cdot \bar{s}) \frac{1}{r} \frac{\partial \rho(r)}{\partial r}, \quad (6)$$

где  $V_{sl}(r)$  – потенциал спин-орбитального взаимодействия,  $r$  – радиальная переменная,  $\rho$  – плотность ядра,  $\bar{l}$  – оператор орбитального момента,  $\bar{s}$  – оператор спина.

Во всех теоретических подходах к строению ядра среднее поле описывают конечным потенциалом с размытым краем, который должен воспроизводит зависимость плотности ядерного вещества от радиуса. Обычно в качестве среднего ядерного потенциала с размытым краем берется потенциал Саксона-Вудса и ядро рассматривается как состоящей из центральной части с постоянной плотностью и поверхностной части, где плотность ядерной материи плавно убывает до нуля.

Из выражения (6) имеем, что в центральной части ядра с постоянной плотностью ядерного вещества потенциал спин-орбитального взаимодействия равно нулю. Поскольку единственным фактором, нарушающим вигнеровскую спин-изоспиновую  $SU(4)$ -симметрию, является спин-орбитальное взаимодействие, в центральной части ядра должно реализовываться вигнеровская спин-изоспиновая симметрия. Вигнеровская симметрия нарушается только на поверхности ядра, где  $\partial \rho(r)/\partial r \neq 0$ . С увеличением массового числа  $A$  доля поверхностной части относительно общего объема ядра уменьшается, что равнозначно к уменьшению доли влияния спин-орбитального взаимодействия, нарушающего вигнеровскую симметрию.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. А.М. Нурмухамедов, У.С. Салихбаев, ICNRP'11, 8-я международная конференция Ядерная и радиационная физика, 20-23 сентября 2011, Алматы, Казахстан, Тезисы, 156 с.
2. Ю. В. Гапонов, Ю. И. Григорьян, Ю. С. Лютостанский, ЯФ **31**, 65 (1980).
3. Ю. В. Гапонов, Н. Б. Шульгина, Д. М. Владимиров, Письма в ЖЭТФ **34**, 300 (1981).
4. Yu. V. Gaponov, N. B. Shulgina, and D. M. Vladimirov, Nucl. Phys. A **391**, 93 (1982).
5. Ю. В. Гапонов, *Физика атомного ядра, Материалы XVIII зимней школы ЛИЯФ* (ЛИЯФ, Ленинград, 1983), с. 43.
6. G. Audi, A. H. Wapstra, and C. Thibault, Nucl. Phys. A **729**, 337 (2003).
7. Л. З. Румшицкий, *Математическая обработка результатов эксперимента* (Наука, Москва, 1971).
8. В. И. Калашникова, М. С. Козодаев, *Экспериментальные методы ядерной физики, Т. 1, Детекторы элементарных частиц* (Наука, Москва, 1966).
9. А.М. Нурмухамедов, ЯФ, **72**, № 3, 434 (2009); Physics of Atomic Nuclei, Vol. **72**, No. 3, 401 (2009).
10. А. М. Нурмухамедов, ЯФ **72**, 1489 (2009) [Phys. Atom. Nucl. **72**, 1435 (2009)]
11. В.С. Соловьев, *Теория сложных ядер* (Наука, Москва, 1971). (V.S. Soloviev, *Theory of Complex Nuclei* (Pergamon Press, Oxford, 1976)).
12. О. Бор, Б. Моттelson, *Структура атомного ядра*, (Мир, Москва, 1971), т. 1. (A. Bohr, B.R. Mottelson, Vol. 1 (Benjamin, New York, 1969)).

## ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНЫЙ МАГНИТОГРАФ ДЛЯ МОНИТОРИНГА ПОСТОЯННЫХ И НИЗКОЧАСТОТНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ

С.И. Казанцев, Ю.Н. Коблик, Т.Т. Рахмонов, К.Б. Курбонов

ИЯФ АН Республики Узбекистан, 100214 Ташкент, Узбекистан, E-mail: [koblik@inp.uz](mailto:koblik@inp.uz)

**Введение.** В техническом отношении система мониторинга (наблюдения) магнитного поля Земли сводится к созданию аппаратных средств, обеспечивающих круглосуточную регистрацию одного или нескольких компонентов вектора геомагнитного поля с непрерывной записью измеряемых величин, регистрацию вспомогательных параметров и графическое отображение измеряемых величин.

В качестве таких аппаратных средств могут служить магнитографы, удовлетворяющие ряду требований, а именно: они должны иметь достаточную точность, надежность и стабильность работы; иметь высокую помехозащищенность и автономность в связи с тем, что возможна работа и в полевых условиях; предусматривать работу с датчиками магнитного поля, удаленными на расстояния порядка 100 м и более от остальной аппаратуры и компьютера для исключения электромагнитных помех от оборудования и электросети. Должно также иметься необходимое программное обеспечение, обеспечивающее работу магнитографа с привязкой накапливаемых данных к точному времени, например путем периодической синхронизации часов компьютера с серверами точного времени через Интернет, а также возможность введения предварительных настроек и оперативного вмешательства в настройки в процессе работы. Кроме этого, должна быть обеспечена передача информации в виде суточных файлов на другой компьютер для обработки полученных данных.

**Магнитограф, технические решения, программное обеспечение.** В ИЯФ АН РУз разработан высокочувствительный датчик[1,2] для измерения постоянного и низкочастотного магнитного поля с чувствительностью на уровне 0,01 нТл. Такая чувствительность является рекордной для датчиков, не требующих охлаждения до криогенных температур[2,3]. На базе этого датчика разработан опытный лабораторный образец магнитографа. Структурная схема магнитографа представлена на рисунке 1. Он может быть использован как для непрерывного мониторинга вариаций магнитного поля Земли, так и во многих других приложениях, где требуются высокочувствительные измерения постоянных и низкочастотных магнитных полей в широком диапазоне от 0,01 нТл до 10000 нТл. В качестве чувствительного элемента магнитографа используется датчик магнитного поля с акустической накачкой, принцип работы которого заключается в следующем. В датчике в качестве модуляционного параметра для линейного преобразования индукции измеряемого магнитного поля в амплитуду сигнала переменного напряжения используется изменение магнитной проницаемости чувствительного элемента (ферритмагнитного сердечника) под действием возбуждаемых в нем акустических колебаний ультразвуковой частоты по гармоническому закону. Возникающие при этом механические напряжения в материале сердечника приводят к синхронному изменению его магнитной проницаемости, следовательно, и к синхронному изменению магнитной индукции в материале сердечника при постоянном значении измеряемой напряженности поля. В свою очередь, изменяющаяся по гармоническому закону индукция в сердечнике, вызывает появление ЭДС в измерительной катушке, охватывающей стержень. Подробная информация о конструкции и характеристиках датчика опубликована ранее в работах [1,2].

Как видно из рисунка 1, в структуру магнитографа, кроме датчика, введены дополнительно АЦП, адаптер СОМ порта с гальванической развязкой, сетевой блок питания, обеспечивающий первичное питание адаптера, линии и датчика магнитного поля. Нами применен АЦП с выходным интерфейсом по стандарту 1-Wire на недорогой микросхеме типа DS2450s. Данный АЦП имеет 4 независимых входа, что позволяет одновременно оцифровывать 4 аналоговых сигнала. В свою очередь, это дает возможность регистрировать одним АЦП до трех компонентов магнитного поля Земли плюс служебный сигнал. В качестве служебного сигнала может регистрироваться, например, температура внутри корпуса датчика для введения температурных поправок при полевых измерениях, либо сигнал от встроенного калибратора, компенсатора магнитного поля и т.п.

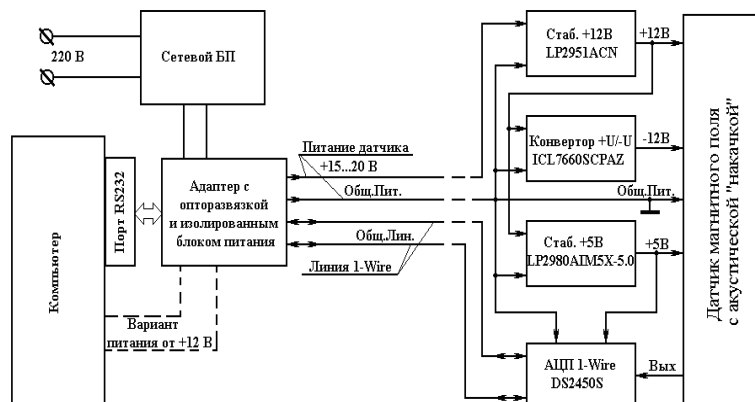


Рис. 1. Структурная схема магнитографа.

Адаптер COM порта с гальванической развязкой служит для согласования интерфейса 1-Wire с интерфейсом RS232, используемым COM портом компьютера. Кроме того, адаптер обеспечивает гальваническую развязку длинной линии связи от компьютера, тем самым, повышая надежность и помехозащищенность системы. Схема одного из вариантов адаптера приведена на рисунке 2.

Как видно, гальваническая опторазвязка реализована на микросхемах DA3 и DA4, питание части адаптера со стороны компьютера обеспечено непосредственно от COM порта через диодные сборки VD8 VD10 и микросхему стабилизатора напряжения DA2. Питание части адаптера со стороны линии обеспечено отдельным маломощным блоком питания на 9 вольт – это стандартный недорогой блок питания в виде сетевой вилки с увеличенным корпусом, применяемый для питания всевозможных бытовых электронных устройств. Слева на рисунке показано соединение с выводами COM порта компьютера, справа – соединение с сигнальным и возвратным проводниками длинной телефонной линии, идущей к датчику магнитного поля. В состав адаптера входит также гальванически развязанный источник питания датчика магнитного поля (на схеме не показан). Это может быть любой подходящий по напряжению маломощный блок питания с регулируемым напряжением. Напряжение питания на датчик магнитного поля подается по двум оставшимся проводникам четырех проводной телефонной линии. Соединение общего провода питания с возвратным (общим) проводником 1-Wire линии выполнено на дальнем конце линии около датчика. Это сделано для того, чтобы исключить падение напряжения на возвратном проводнике за счет протекания тока питания. Тем самым исключается сдвиг уровня напряжения сигнала 1-Wire линии.

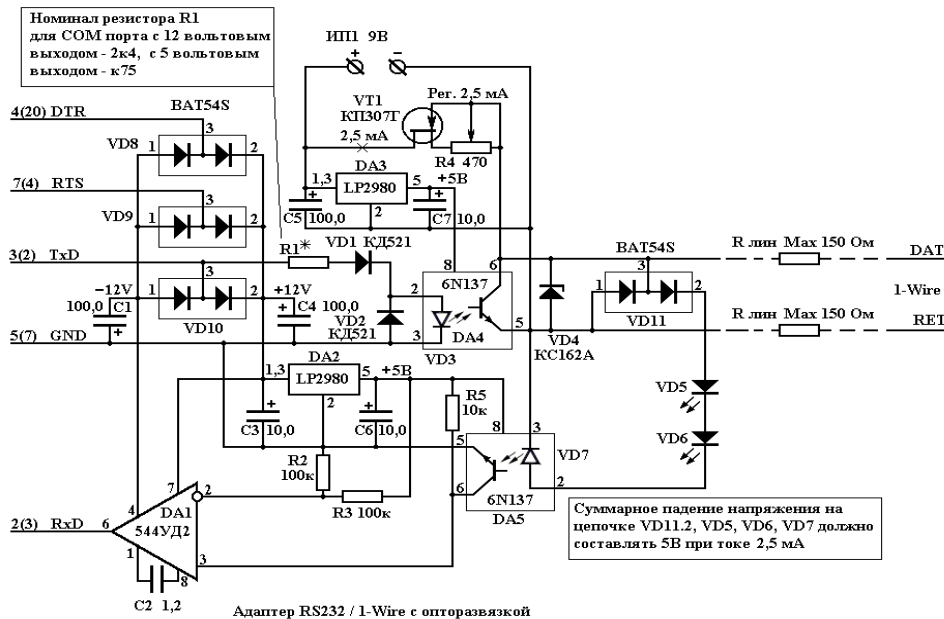


Рис. 2. Схема адаптера.

Разработанное нами программное обеспечение магнитографа рассчитано на работу в среде WINDOWS 98, 2000, NT, XP и обеспечивает непрерывное накопление сигналов по 4-м входам АЦП. Кроме того, по выбору пользователя может производиться усреднение полученных цифровых значений за время цикла, установленное в файле INI. Момент времени каждого измерения регистрируется по часам компьютера, что обеспечивает точную привязку накапливаемых данных к временной шкале. Программное обеспечение позволяет также производить статистическую оценку полученных значений и заносить их в файл данных. В каждой строке этого файла по столбцам от первого до четвертого содержится следующая информация: значение времени по часам компьютера с точностью до секунды для отсчетов, занесенных в данную строку; среднее значение измеряемой величины по первому входу АЦП; среднеквадратичное отклонение единичных отсчетов для этого входа за время цикла; количество единичных отсчетов для этого входа за время цикла. Далее в 5-7 столбцах аналогичная информация содержится по 2-му входу АЦП, в 8-10 – по третьему, в 11-13 – по четвертому. В программе предусмотрены и другие форматы представления данных и сохранения информации в файлах, в том числе и в раздельном виде – для каждого входа отдельный файл. Выбранный пользователем конкретный формат устанавливается в INI файле до запуска программы. В этом файле хранятся и другие пользовательские настройки, помимо упомянутых. Файлы данных записываются в формате \*.xls и удобны для хранения и дальнейшей обработки стандартными средствами Microsoft Office. Образец содержания суточного файла представлен в таблице 1.

**Магнитограф и результаты его испытаний.** Магнитограф демонстрировался на выставке инноваций в 2009 году и получил высокую оценку тех посетителей выставки, профессиональная деятельность которых так или иначе связана с измерениями слабых магнитных полей

В 2008-2010гг. нами были проведены лабораторные и полевые испытания данного прибора. В частности, с 18 по 20 июня 2009 года проведены сравнительные испытания данного магнитографа и магнитно-вариационной станции МВС-1 (конструкции Боброва), имеющейся в распоряжении Института Сейсмологии АН РУз. на магнитной обсерватории "Янгибазар". Эти сравнительные испытания показали значительное преимущество нашего образца магнитографа по сравнению с имеющейся МВС-1 по целому ряду параметров.

Таблица 1. Образец содержания суточного файла.

	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M
1	Суточный файл результатов измерения магнитного поля сумарные данные												
2	Данные для АЦП-2450 входы которых заданы опцией WRITE_DAN_SUM_FILE=												
3	Дата 2008.1.24												
4	Time	N= 1 Дан	N= 1 СК(	N= 1 Коли	N= 2 Дан	N= 2 СК(	N= 2 Коли	N= 3 Дан	N= 3 СК(	N= 3 Коли	N= 4 Дан	N= 4 СК(	N= 4 Коли
5	6:10:05	48447	5	2	48425	3	2	48455	37	2	48463	26	2
6	6:10:10	48456	37	20	48445	27	20	48449	32	20	48440	42	20
7	6:10:15	48448	36	37	48439	29	37	48442	29	36	48458	33	36
8	6:10:20	48449	35	36	48453	36	35	48452	47	36	48446	24	36
9	6:10:25	48437	32	34	48449	44	35	48455	33	35	48453	36	35
10	6:10:30	48449	29	35	48441	28	35	48451	27	35	48441	25	35
11	6:10:35	48460	33	35	48452	35	35	48451	32	35	48458	34	35

Внешний вид образца магнитографа приведен на рисунках 3 и 4.

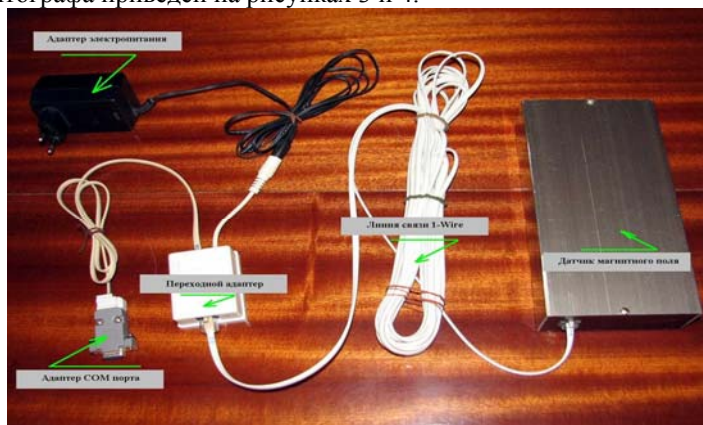


Рис.3. Отдельные составляющие магнитографа.

А именно:

- В разработанном нами образце магнитографа непрерывная круглосуточная регистрация магнитного поля производится с помощью компьютера (ноутбука). Суточные файлы могут быть просмотрены в любой момент времени, могут храниться, копироваться и обрабатываться программно в любое время, в том числе и с использованием удаленного доступа по локальной сети или через Интернет. В МВС-1 запись производится на фотобумагу лучом света, и может быть просмотрена лишь после истечения суток и проявки, что, в случае какого-либо сбоя или брака приводит к потере данных за сутки. Кроме этого, требуется кропотливая и трудоемкая работа по переводу суточной записи с фотобумаги в цифровой вид с неизбежными потерями точности.

- Чувствительность и разрешающая способность по времени, точность привязки к временной шкале у разработанного нами образца, как минимум на 2 порядка выше, чем у МВС-1. Данные утверждения подтверждаются нижеприведенными рисунками.

На рисунке 5 показан общий вид записи суточных измерений на фотобумаге (МВС-1). На рисунке 6 - фрагмент этой записи, на котором показана запись сигнала с расчетной амплитудой 3,2 нТл, 0,8 нТл и 0,36 нТл. Период сигнала составлял 600 секунд (10 минут).

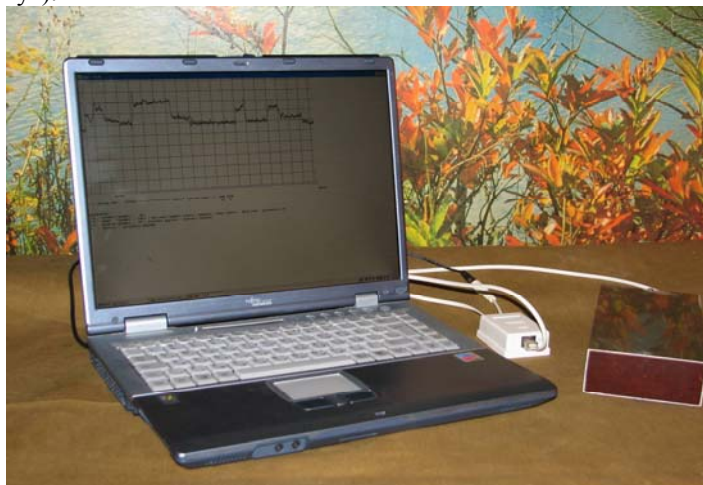


Рис.4. Внешний вид образца магнитографа (справа датчик магнитного поля).



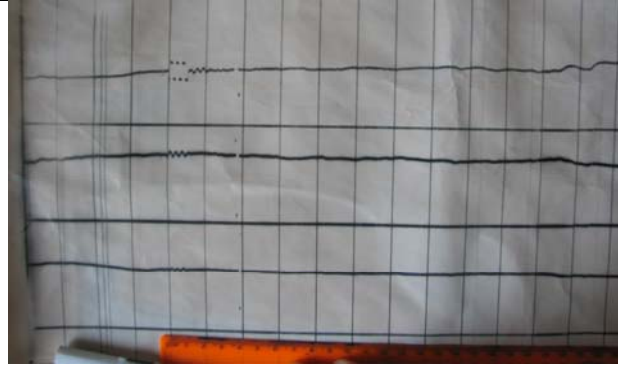


Рис. 5. Общий вид записи суточных измерений на фотобумаге (МВС-1).

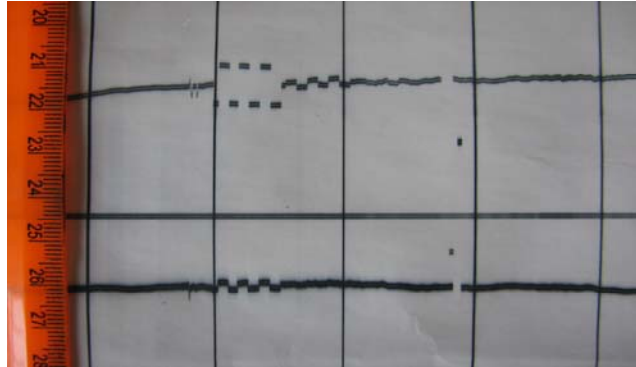


Рис. 6. Фрагмент записи сигнала с расчетной амплитудой 3,2 нТл, 0,8 нТл и 0,36 нТл.

На рисунке 7 показана запись сигнала с амплитудой 0,8 нТл, 0,36 нТл, 0,2 нТл и 0,123 нТл, полученная нашим образцом магнитографа. Период изменения сигнала - 1 минута.

По оси ординат на рисунках 7 и 8 показана величина индукции магнитного поля в нТл, а по оси абсцисс - ташкентское время. В заголовках приведенных скриншотов имеется дата записи, соответственно 18 и 19 июня 2009 года.

На рисунке 8 видно, что при такой амплитуде сигнала сравнимую величину имеют флуктуации магнитного поля, обусловленные влиянием ионосферы. Амплитуда этих флуктуаций значительно изменяется в зависимости от активности Солнца, времени года и времени суток. Нам лишь однажды удалось в ночное время и в зимний период уловить непродолжительный период времени, когда амплитуда этих флуктуаций составляла всего несколько десятков пикотесла. По этой причине запись сигналов с меньшей амплитудой может быть произведена лишь в специальных условиях - в камерах магнитного вакуума. Либо может быть получена с помощью использования двух идентичных и параллельно расположенных датчиков, с подачей измеряемого сигнала лишь на один из них. Сигнал второго, с регистрацией только ионосферных флуктуаций, будет в таком варианте измерений вычитаться из сигнала, регистрируемого первым датчиком.

Помимо сравнения чувствительности, по приведенным рисункам можно оценить и разрешение записи по времени. Так, период записываемого сигнала различался в 10 раз. А постоянная времени усреднения при обработке сигнала с образца компьютерного магнитографа составляла 3 секунды. (Для сравнения - уже при уменьшении периода до 1 минуты на МВС-1 не удастся получить читаемой записи).

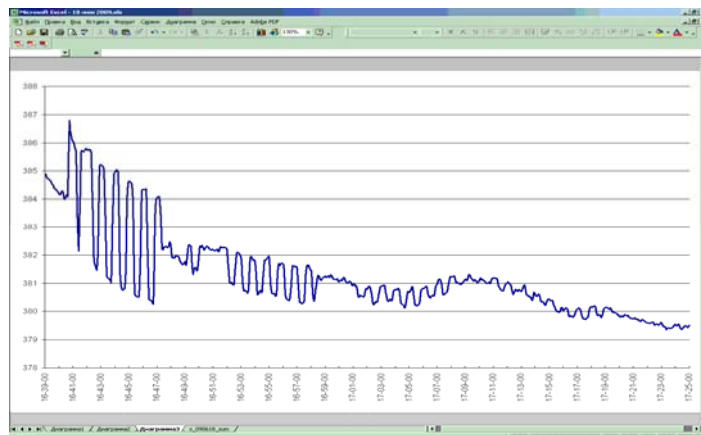


Рис. 7. Запись сигнала с амплитудой 0,8 нТл, 0,36 нТл, 0,2 нТл и 0,123 нТл.

На рисунке 8 показана запись сигнала с амплитудой 0,123 нТл и с тем же периодом.

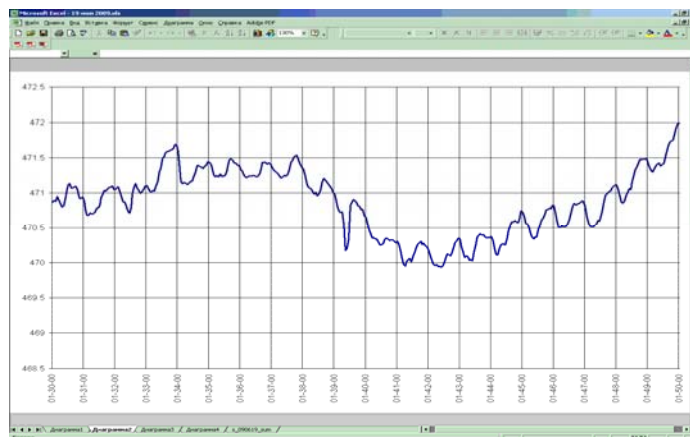


Рис. 8. Запись сигнала с амплитудой 0,123 нТл.

**Заключение.** Из сопоставления вышеприведенных данных видно значительное преимущество разработанного нами образца магнитографа по сравнению с эксплуатирующейся МВС-1 по чувствительности и временным характеристикам. Помимо этих преимуществ имеются и другие, обусловленные как высокой чувствительностью, так и получением информации сразу в цифровом виде, и сохраняемых в формате суточных файлов.

**Литература**

1. S.I. Kazantsev, Yu.N. Koblik, V.P.Sotnichenko, Instruments and Experimental Techniques, Vol. 48, № 3, 2005, pp.406-410.
2. Казанцев С.И., Коблик Ю.Н., Рахронов Т.Т. Материалы 6-ой международной конференции «Ядерная и радиационная физика», 4-7 июня 2007, Алматы, Казахстан, Доклады, 2008, I Том. стр.66-69.
3. Appl. Phys. Let., 2006, 88, 062510, <http://perst.issph.kiae.ru>

**ДОЗОВЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПУЧКА ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ**

Г. А. Абдуллаева, Ю. Н. Коблик, Г. А. Кулабдуллаев  
 Институт Ядерной Физики АН РУз, Ташкент, Узбекистан, E-mail: [koblik@inp.uz](mailto:koblik@inp.uz)

**ВВЕДЕНИЕ**

В последние десятилетия в мире наблюдается медленный (0,5 – 1% в год), но неуклонный рост заболеваемости раком. Онкологические заболевания продолжают занимать первые строки причин преждевременной смерти, причем как в экономически развитых странах, так и в отсталых. Лучевая терапия признана в современной зарубежной медицине одним из самых эффективных методов при лечении рака. По последним данным, в различных ее видах нуждаются около 70% онкологических больных. Однако у некоторых больных встречаются радиорезистентные формы злокачественных новообразований, устойчивые к традиционному лечебному воздействию с помощью гамма – и электронного излучения. В этих случаях более эффективно использование плотниоизирующего излучения. Разработка более эффективных технологий лечения раковых заболеваний с использованием плотниоизирующих излучений является актуальной задачей и имеет огромное значение для практической медицины. Основная задача лучевой терапии - это поражение ионизирующим излучением опухолевых тканей без повреждения нормальных тканей, попадающих в зону воздействия [1,2]. Одним из направлений в решении проблемы избирательного поражения злокачественных опухолей является развитие метода нейтрон захватной терапии (НЗТ). НЗТ является бинарной технологией, использующей тропные к опухоли препараты, содержащие нуклиды (<sup>10</sup>B или <sup>157</sup>Gd), которые, поглощая нейтроны, образуют вторичное плотниоизирующее излучение, губительное для опухолевых клеток. В отличие от традиционной лучевой терапии, наведение на цель выполняется, прежде всего, избирательной концентрацией препаратов в опухоли, а не нацеливанием пучка [3]. Сегодня методика НЗТ интенсивно развивается во многих странах мира (США, Евросоюз, Япония, Россия, Аргентина, Индонезия и др.). Поэтому создание в Узбекистане базы для предклинических и клинических исследований в области НЗТ является актуальной задачей, имеющей огромное медико-социальное значение.

Развитие НЗТ методики требует подходящего по интенсивности и энергетическому составу пучка нейтронов, а именно необходимо обеспечить поток нейтронов (0,5 эВ<E<10 кэВ) не менее 10<sup>9</sup> нейтрон/см<sup>2</sup>·с[2]. Нейтроны, генерируемые ядерными реакторами, обладают рядом преимуществ по сравнению с другими источниками нейтронов: широкий энергетический спектр, высокая относительная биологическая эффективность (ОБЭ), высокая мощность дозы. Проникающая способность наиболее эффективных в плане ОБЭ реакторных нейтронов достаточна для лечения

многих расположенных на глубине 5 - 6 см опухолей. Использование специально разработанного оборудования (фильтры, коллиматоры) позволяет создать в зоне опухоли дополнительный флюенс эпитепловых нейтронов. Выполненная нами модернизация одного из каналов исследовательского ядерного реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУз позволила получить из энергетического спектра реакторных нейтронов поток эпитепловых нейтронов с характеристиками приемлемыми для развития метода метода НЗТ [3]. На выходе нейтронного пучка создан специализированный бокс для проведения облучений исследуемых объектов, оборудованный биологической защитой. Размер бокса соответствует условиям беспрепятственной работы в нем персонала по установке облучаемого объекта и расположения систем жизнеобеспечения и телеметрии. Радиационная защита бокса соответствует нормам радиационной безопасности для персонала. При этом в любой точке на внешнем периметре бокса (при открытом пучке) суммарная доза излучений не превышает допустимую дозу для физического зала реактора, и, соответственно, внутри бокса при закрытом пучке. Таким образом, создана первая в Узбекистане испытательная база для клинических исследований НЗТ.

### 1. МЕТОД РАСЧЕТА ДОЗОВЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ПУЧКА ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

Важным фактором мониторинга нейтронного пучка является достижение требуемой плотности потока эпитепловых нейтронов при минимизации быстрой нейтронной компоненты. Поскольку быстрые нейтроны наряду с процессами упругого рассеяния на элементах ткани, так же вызывают побочные биологические эффекты, за счёт реакции глубокого отщепления с выбиванием из ядер С, N, О протонов с большим значением линейной передачи энергии. Таким образом, для прогнозирования поглощенной дозы от нейтронов в облучаемых опухолях требуется детальное знание спектральных характеристик пучка нейтронов.

Проблемы дозиметрии нейтронного излучения экспериментальными методами связаны с тем, что чувствительность практически всех нейтронных дозиметров сложным образом зависит от энергии нейтронов. Поэтому этапу собственно дозиметрии должен предшествовать этап измерения спектра нейтронов. При известном спектре нейтронного пучка можно определить такую важную характеристику нейтронов, как керма – близкий аналог поглощенной дозы нейтронов (KERMA – Kinetic Energy Released in Matter – кинетическая энергия, выделенная в веществе). Единицей, как поглощенной дозы, так и кермы является 1Грэй (Гр)=1Дж/кг.

Преимуществом кермы является возможность её расчетного определения для известного потока, как моноэнергетических нейтронов, так и для спектра нейтронов с использованием соотношения:

$$K = \int_{E_n^{\min}}^{E_n^{\max}} k(E_n) \cdot \Phi(E_n) dE_n , \quad (1)$$

где  $k(E_n)$  – удельная керма, которая рассчитана и табулирована для многих химических элементов и ряда материалов (в том числе для воды и живой ткани) в диапазоне энергий нейтронов от тепловых до 100 МэВ [3],  $\Phi(E_n)$  – поток нейтронов. Интегрирование ведется по всему спектру нейтронов.

### 2. ИЗМЕРЕНИЕ СПЕКТРАЛЬНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК ПУЧКА ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ

Поток и спектр нейтронов эпитеплогового нейтронного пучка на выходе горизонтального канала (ГК) ядерного реактора ВВР-СМ определен нами экспериментально и рассчитан теоретически методом Монте-Карло с помощью программы MCNP-4C. Для экспериментального определения зависимости плотности потока нейтронов от энергии применялась методика активации тонких фольг. Образование радиоактивных изотопов в результате взаимодействия нейтронов с материалом фольги (образца) является физическим принципом этого метода. Использование этого метода позволяет охватить весь диапазон реакторного спектра. Многие ядра имеют резонансный характер захвата нейтронов и, исходя из зависимости сечения такого ядра от энергии нейтронов, нетрудно прийти к выводу о том, что активность фольги (образца) связана, в основном, с поглощением нейтронов в области основного резонанса [4]. Плотность нейтронного потока рассчитывалась измеренному значению активности используемых образцов. Измерения активности образцов, осуществлялись с помощью германиевого детектора эффективностью ~10% со спектрометрической системой GENIE 2000 фирмы CANBERRA. Экспериментальные данные по измерениям плотности нейтронного потока приведены в Таблице 1.

Таблица 1 - Экспериментальные данные измерений плотности нейтронного потока

Образец	$E_n$ - энергия индикации	$\Phi$ , н/см <sup>2</sup> ·с
<sup>110</sup> Cd	<0,1 эВ	$5,29 \times 10^6$
<sup>115</sup> In	1,456 эВ	$6,4 \times 10^6$
<sup>121</sup> Sb	8,0 эВ	$1,2 \times 10^7$
<sup>186</sup> W	18,4 эВ	$9,15 \times 10^6$
<sup>59</sup> Co	132 эВ	$6,08 \times 10^8$
<sup>55</sup> Mn	337 эВ	$5,43 \times 10^6$
<sup>63</sup> Cu	577 эВ	$5,5 \times 10^6$
<sup>23</sup> Na	2950 эВ	$7,54 \times 10^6$
<sup>58</sup> Ni	0,4 МэВ	$3,9 \times 10^5$
<sup>24</sup> Mg	4,9 МэВ	$3,96 \times 10^5$

3. дозовые характеристики пучка эпитепловых нейтронов

Полученные экспериментальные данные измерений плотности нейтронного потока дают возможность расчетного определения кермы для созданного эпитеплого нейтронного пучка на выходе канала. В данном случае в качестве материала рассматривается воздух,  $k(E_n)$  – удельная керма от энергии нейтронов для воздуха ( $^{14}\text{N}$  – 75,5%;  $^{16}\text{O}$  – 23,15%;  $^{40}\text{Ar}$  – 1,292%;  $^{12}\text{C}$  – 0,012023;  $^1\text{H}$  – 0,00008%) представлена на рисунке 1.

Зависимость  $k(E_n)$  получена с использованием ядерно-физических баз данных ICRU 63 и JENDL-3.2 [5-6].

Используя в соотношении (1) полученную зависимость  $k(E_n)$  для воздуха и экспериментальные данные измерений плотности нейтронного потока проведем интегрирование в пределах экспериментального спектра нейтронов, получим  $K=7,49 \times 10^{-3}$  Гр/сек для эпитеплого нейтронного пучка специализированного ГК ядерного реактора ВВР-СМ.

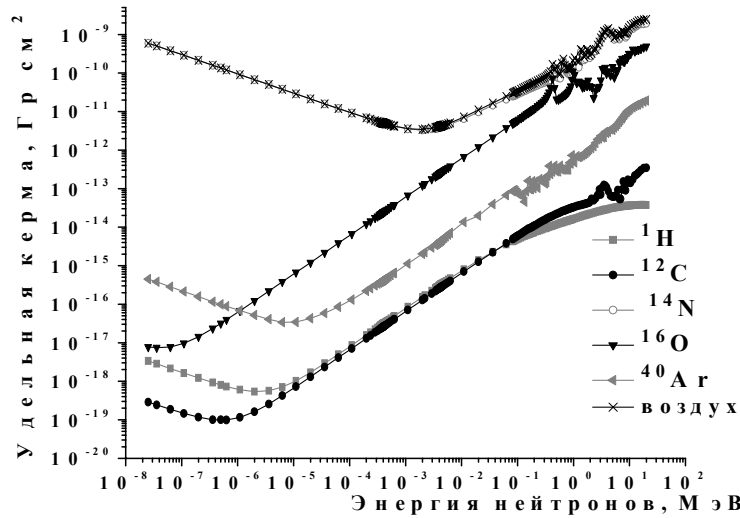


Рисунок 1 -  $k(E_n)$  – удельная керма в зависимости от энергии нейтронов для воздуха

Проводимые исследования по НЗТ показывают, что наибольший терапевтический эффект достигается при использовании относительно «чистого» эпитеплого нейтронного пучка, т.е. пучка с наименьшим вкладом сопутствующих излучений [1]. Имеющиеся технические возможности сегодня не позволяют полностью устранить сопутствующие излучения и поэтому используемые для НЗТ исследований нейтронные пучки не избавлены от этих недостатков. В связи с этим МАГАТЭ установило желательные параметры для пучков эпитепловых нейтронов, применяемых для НЗТ [7].

Численные значения параметров качества пучка получены с использованием данных работы [8]. Ниже приведена таблица 2, в которой полученные характеристики пучка эпитепловых нейтронов сравниваются с требованиями МАГАТЭ, предъявляемыми к пучкам для НЗТ.

Таблица 2 – Сравнение характеристик пучка эпитепловых нейтронов ГК ядерного реактора ВВР-СМ с требованиями МАГАТЭ.

	$\Phi_{ep}$ , н/см <sup>2</sup> с	$D_f/\Phi_{ep}$ , Гр см <sup>2</sup>	$D_\gamma/\Phi_{ep}$ , Гр см <sup>2</sup>	$\Phi_f/\Phi_{ep}$	$J/\Phi_{ep}$
МАГАТЭ	$> 10^8 - 10^9$	$< 2 \times 10^{-13}$	$< 2 \times 10^{-13}$	$< 0,05$	$> 0,7$
ИЯФ АН РУз	$6,54 \times 10^8$	$2,6 \times 10^{-13}$	$0,12 \times 10^{-13}$	0,008	0,77

В таблице 2 приняты следующие обозначения:  $\Phi_{ep}$  – плотность потока эпитепловых нейтронов,

$D_f$  и  $D_\gamma$  - мощность дозы быстрых нейтронов и  $\gamma$ -квантов соответственно,

$J/\Phi$  - отношение потока направленных нейтронов к полному нейтронному потоку.

**ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

Рассчитано значение кермы для эпитеплого нейтронного пучка ГК ядерного реактора ВВР-СМ равно  $K=7,49 \times 10^{-3}$  Гр/сек. Полученная величина кермы сопоставима с значением кермы для живой ткани  $\sim 8,3 \times 10^{-3}$  Гр/сек [9-10].

Сравнительный анализ показывает, что дозовые характеристики пучка эпитепловых нейтронов, сформированного на модернизированном ГК типового ядерного реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУз, удовлетворяют требованиям МАГАТЭ. Пучок эпитепловых нейтронов может использоваться для проведения медико-биологических исследований, включая и клинические испытания по лечению не глубоколежащих опухолей. Для клинических испытаний по лечению глубоколежащих опухолей желательно улучшить показатели пучка по параметрам  $\Phi_{ep}$  и  $D_f/\Phi_{ep}$ .

1. Nuclear medicine, by Ed. P.P. van Rijk, A.J. van Dongen, v. 1-3, Azu\Hku Ma-Imm, 1995.
2. А.Ф. Цыб, С.Е. Ульяненко, Ю.С. Мардынский. Нейтроны в лечении злокачественных новообразований. Обнинск, 2003.
3. Абдуллаева Г.А., Коблик Ю.Н., Кулабдуллаев Г.А. «Использование реактора ВВР-СМ для развития метода нейтронзахватной терапии в Узбекистане». // Известия РАН, сер. Физическая. – Москва, 2009. - т.73, №4. - С.540-543.
4. Абрамов А.И., Казанский Ю.А., Матусевич Е.С. Основы экспериментальных методов ядерной физики. М.: Энергоатомиздат, 1984, с. 388.
5. Chadwick et al., Medical Physics 26, (1999) p.974.
6. ICRU Report 63 "Nuclear Data for Neutron and Proton Radiotherapy and for Radiation Protection".
7. Current Status of NCT. IAEA-TECDOC-1223, IAEA, 2001, Vienna.
8. В. И. Иванов В.П. Мошковский. Сборник задач по дозиметрии. 1980, Москва, Атомиздат.
9. Auterinen et al, Quality assurance procedures for the neutron beam monitors at the FiR 1 BNCT facility. Applied Radiation and Isotopes 61, 2004, 1015–1019.
10. C.J. Tung et al, Characteristics of the new THOR epithermal neutron beam for BNCT. Applied Radiation and Isotopes 61, 2004, 861–864.

## ИЗУЧЕНИЕ ЭФФЕКТОВ ХОЛОДНОЙ ЯДЕРНОЙ МАТЕРИИ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ ФЕНИКС

Д.О. Котов<sup>1,2</sup>, Ю.Г. Рябов<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Институт ядерной физики им. Б.П. Константинова, Гатчина

<sup>2</sup>Санкт-Петербургский государственный политехнический университет

### 1. Введение

Эксперимент ФЕНИКС [1] является одной из двух крупных установок на релятивистском коллайдере тяжёлых ионов RHIC [2]. Основной целью эксперимента ФЕНИКС является изучение столкновений тяжёлых релятивистских ядер, в которых можно достигнуть больших плотностей энергии и температур [3]. Согласно расчетам, выполненным на решетке, при повышении температуры ядерной материи до 170 МэВ должен происходить переход из обычной ядерной материи в состояние кварк-глюонной плазмы. В таком состоянии нарушается принцип конфайнмента (пленения кварков в адронах) и происходит частичное восстановление киральной симметрии [4]. При этом сам термин кварк-глюонная плазма используется для общего описания системы, в которой доминирующими степенями свободы являются не бесцветные адроны, а кварки и глюоны.

Лёгкие адроны, обильно рождающиеся в ядро-ядерных ( $A+A$ ) взаимодействиях, являются носителями важной информации о свойствах образующейся среды. Через измерения свойств адронов можно исследовать как ряд эффектов холодной ядерной материи во взаимодействиях лёгких и тяжёлых ядер, так и эффекты плотной цветовой среды, образующейся в  $A+A$  взаимодействиях.

Одним из наиболее интересных эффектов, открытых на RHIC, стало наблюдение подавления выходов адронов в области больших поперечных импульсов ( $p_T > 5.0$  ГэВ/с) в центральных столкновениях тяжёлых ядер [5,6]. Подавление объясняется энергетическими потерями жёстко рассеянных партонов, распространяющихся в среде с большой плотностью цветковых зарядов (эффект гашения струй) [7]. Высокоэнергетичные партоны в данном подходе используются для измерения, как плотности цветковых зарядов, так и степени взаимодействия партонов со средой. Для получения численных оценок величин, описывающих свойства среды, необходимо обеспечить как можно более точные измерения данного эффекта в как можно более широкой области по поперечному импульсу и для максимально возможного набора частиц.

В данной статье представлены результаты измерений факторов ядерной модификации для лёгких мезонов и протонов в столкновениях ядер дейтерия и золота ( $d+Au$ ), ядер меди ( $Cu+Cu$ ) и ядер золота ( $Au+Au$ ) при энергиях  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  и 200 ГэВ в эксперименте ФЕНИКС. Обсуждаются возможные механизмы, объясняющие различную степень подавления выходов адронов в зависимости от поперечного импульса, массы и кваркового состава.

### 2. Факторы ядерной модификации лёгких адронов

Для восстановления треков заряженных частиц и их импульсов в эксперименте ФЕНИКС используется уникальная трековая система, основными элементами которой являются дрейфовые и падовые камеры. Для подтверждения треков используются несколько слоев падовых камер, которые с высокой точностью измеряют координаты точек пересечения треков заряженных частиц с их плоскостями. Времяпролетная система используется для идентификации адронов в области малых и промежуточных поперечных импульсов. Измерение энергии и пространственных координат фотонов и электронов, рождающихся в столкновениях тяжёлых ядер, осуществляется при помощи электромагнитного калориметра.

В таблице 1 представлены сталкивающиеся системы и энергии взаимодействия, которые изучались в эксперименте ФЕНИКС к настоящему времени. Результаты измерений в элементарных нуклон-нуклонных

столкновениях используются в качестве базисных для сравнения с более тяжелыми взаимодействующими системами. Измерения в области поперечных импульсов  $p_T > 2.0$  ГэВ/с используются для проверки расчётов пертурбативной КХД [8,9].

Таблица 1 - Сталкивающиеся системы и энергии взаимодействия, которые изучались в эксперименте ФЕНИКС к настоящему времени

	p+p	d+Au	Cu+Cu	Au+Au
22,4 ГэВ	–	–	+	–
62,4 ГэВ	+	–	+	+
130 ГэВ	–	–	–	+
200 ГэВ	+	+	+	+

При условии отсутствия коллективных эффектов выход адронов в  $A+A$  взаимодействиях пропорционален выходу адронов, измеренному в протон-протонных взаимодействиях и помноженному на число парных неупругих нуклон-нуклонных столкновений. Коллективные эффекты в ядро-ядерных взаимодействиях изучаются при помощи факторов ядерной модификации  $R_{AA}$ , которые определяются как  $R_{AA}(p_T) = dN_{AA}/(\langle N_{столкн} \rangle \times dN_{pp})$ , где  $dN_{AA}(dN_{pp})$  – выход частиц в  $A+A$  (p+p) столкновениях, а  $\langle N_{столкн} \rangle$  – число парных неупругих нуклон-нуклонных столкновений. Значения  $\langle N_{столкн} \rangle$  рассчитываются с использованием модели Глаубера [10,11].

В таблице 2 приведено число парных нуклон-нуклонных столкновений и число нуклонов, участвующих во взаимодействии, для центральных столкновений ядер d+Au и Au+Au при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ. Количество нуклонов, участвующих во взаимодействии, в столкновениях ядер золота много больше того же числа для столкновений ядер дейтерия и золота. Признаки образования плотной горячей цветовой среды необходимо искать в столкновениях ядер золота, в то время как столкновения ядер дейтерия и ядер золота подходят для изучения эффектов холодной ядерной материи.

Таблица 2 - Среднее число парных нуклон нуклонных столкновений и среднее число нуклонов, участвующих во взаимодействии, для центральных столкновений ядер дейтерия и ядер золота и ядер золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ.

$\sqrt{s_{NN}} = 200$ ГэВ	$\langle N_{уч} \rangle$	$\langle N_{столкн} \rangle$
d+Au	$15.6 \pm 0.9$	$15.4 \pm 1.0$
Au+Au	$352.2 \pm 3.3$	$955.4 \pm 93.6$

С целью изучения эффектов холодной ядерной материи на коллайдере RHIC в 2003 и 2008 годах были проведены два физических цикла работ, посвящённых столкновениям ядер дейтерия и золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ. Объём данных, полученных в последнем сеансе, существенно возрос, что позволило уменьшить величину статистических неопределённостей и расширить диапазон измерений в область больших поперечных импульсов.

На рисунке 1 представлены факторы ядерной модификации, измеренные для лёгких адронов в центральных и периферийных столкновениях ядер дейтерия и ядер золота, а также всех столкновениях ядер дейтерия и ядер золота без отбора по центральности при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ. На данном и всех последующих рисунках условные обозначения в виде “усов” и “прямоугольников” соответствуют статистическим и систематическим ошибкам измерений соответственно.

В центральных столкновениях ядер дейтерия и ядер золота в области промежуточных поперечных импульсов ( $2.0 < p_T < 5.0$  ГэВ/с) наблюдается избыточный выход частиц (эффект Кронина [12]), который более ярко выражен для барионов, чем для мезонов. Избыток выхода частиц уменьшается при переходе от центральных столкновений к периферийным. В периферийных столкновениях измеренные факторы ядерной модификации близки к единице, как для мезонов, так и для барионов.

Факторы ядерной модификации, измеренные для протонов и  $\phi$ -мезонов, массы которых практически одинаковы, в центральных столкновениях ядер дейтерия и золота, существенно различаются. Данное наблюдение трудно описать, если предположить, что эффект Кронина возникает в результате многократного мягкого перерассеяния партонов в начальном состоянии [12,13]. Одним из возможных объяснений является рекомбинация партонов в конечном состоянии [14,15]. В таком случае, барионы, состоящие из трех валентных кварков, получают большую прибавку к поперечному импульсу, чем мезоны, состоящие из двух.

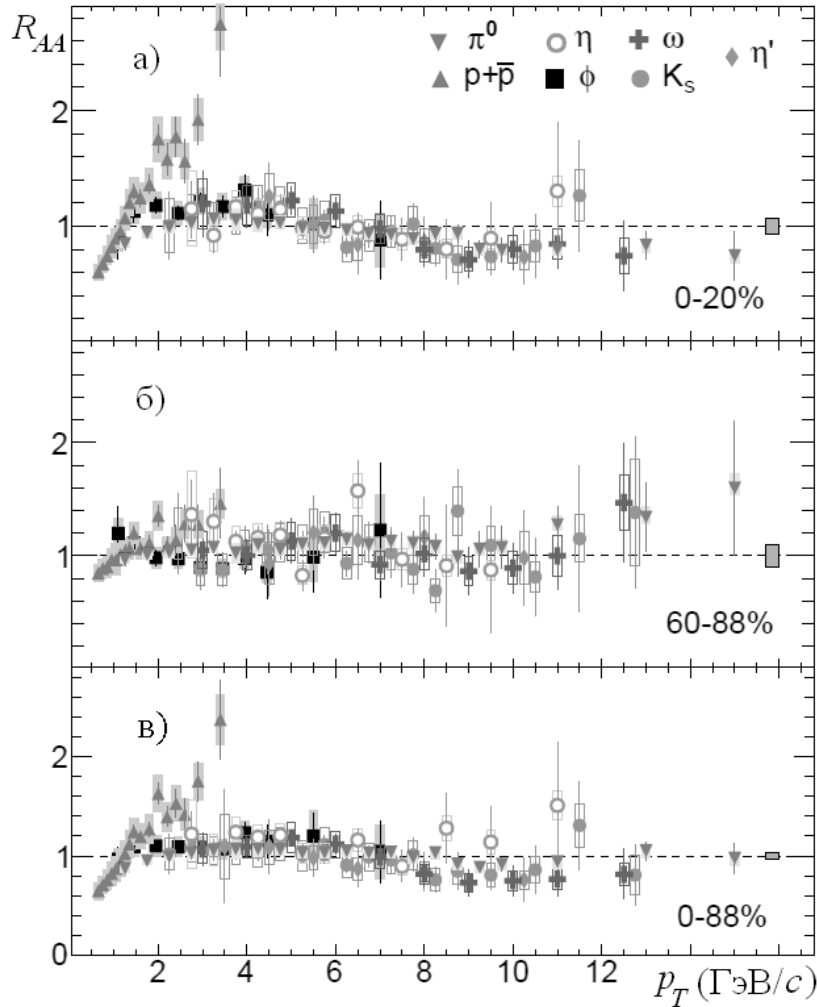


Рис. 1. Зависимость факторов ядерной модификации  $R_{AA}$  от поперечного импульса адронов  $p_T$ , измеренная во взаимодействиях ядер дейтерия и ядер золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ: а) центральные столкновения ядер, б) периферийные столкновения ядер, в) без отбора по центральности. Серые “прямоугольники” вблизи оси ординат соответствуют неопределенностям  $\langle N_{столкн} \rangle$ .

На рисунке 2 представлены факторы ядерной модификации для лёгких адронов, измеренные в центральных и периферийных столкновениях ядер золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ. В центральных столкновениях ядер золота выход мезонов в области больших поперечных импульсов подавлен приблизительно одинаково (в 5 раз). Подобное подавление не может быть объяснено эффектами начального состояния и, по-видимому, связано с образованием плотной и горячей среды в таких столкновениях. Одним из возможных объяснений являются энергетические потери партонов в плотной цветовой среде перед стадией фрагментацией [16,17], а также неупругое перерасcеяние адронов в конечных стадиях взаимодействия [18,19].

Тем не менее, предположение об энергетических потерях партонов в плотной цветовой среде не позволяет полностью описать поведение факторов ядерной модификации в области промежуточных поперечных импульсов. В центральных столкновениях ядер золота (рис. 2) выход  $\phi$ -мезонов, масса которых много больше массы  $\pi^0$ -мезонов, в области промежуточных поперечных импульсов подавлен в меньшей степени. Выход протонов в области поперечных импульсов  $p_T < 4-5$  ГэВ/с избыточен. Различие факторов ядерной модификации говорит о том, что величина эффекта подавления зависит, как от массы так и от кваркового состава измеряемых частиц.

Для факторов ядерной модификации, измеренных в столкновениях ядер меди при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ, наблюдается похожая картина, хотя и с другими абсолютными значениями, что связано с меньшим числом нуклонов, участвующих во взаимодействии. При этом значения факторов ядерной модификации, измеренных в столкновениях ядер меди и ядер золота, согласуются при одинаковом числе нуклонов, участвующих во взаимодействии. Данный факт позволяет говорить о том, что величина подавления в основном определяется числом нуклонов, участвующих во взаимодействии и практически не зависит от геометрии перекрытия ядер. На рисунке 3 представлены факторы ядерной модификации, измеренные в центральных столкновениях ядер меди при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ, для  $\pi^0$ -мезонов и  $\phi$ -мезонов.



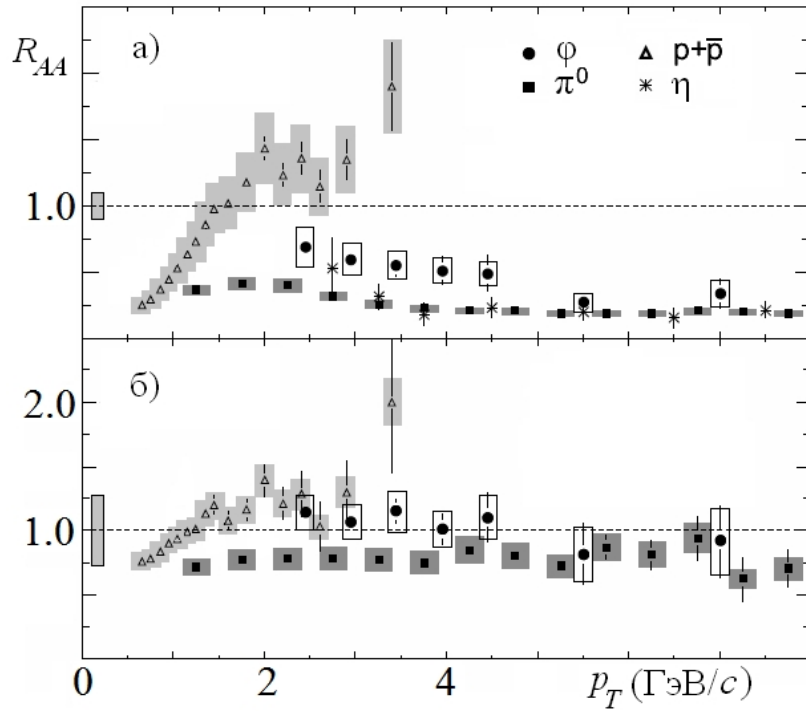


Рис. 2. Зависимость факторов ядерной модификации  $R_{AA}$  от поперечного импульса адронов  $p_T$ , измеренная для  $\phi$ -мезонов (точки),  $\pi^0$ -мезонов (квадраты),  $\eta$ -мезонов (звезды) и протонов (треугольники) во взаимодействиях ядер золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ: а) центральные и б) периферийные столкновения ядер. Серые “прямоугольники” вблизи оси ординат соответствуют неопределенностям  $\langle N_{столкн} \rangle$ .

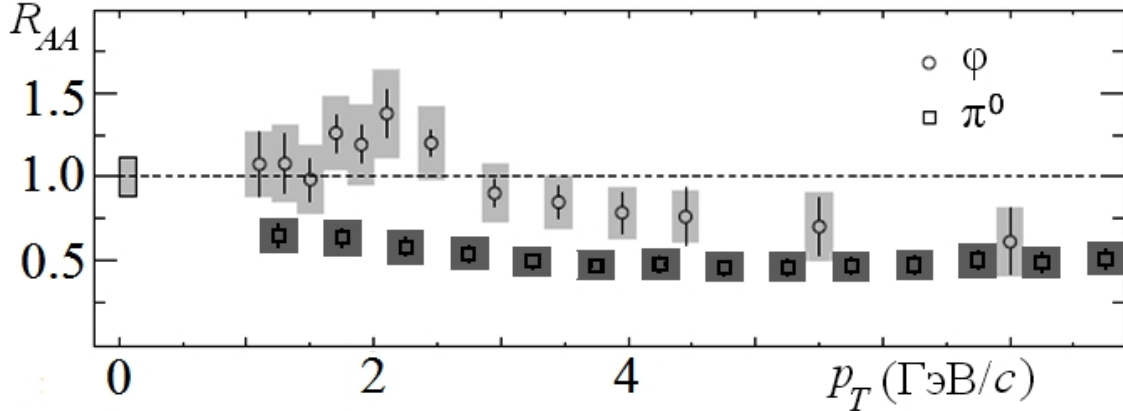


Рис. 3. Зависимость факторов ядерной модификации  $R_{AA}$  от поперечного импульса адронов  $p_T$ , измеренная для  $\phi$ -мезонов (точки) и  $\pi^0$ -мезонов (квадраты) в центральных столкновениях ядер меди при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ. Серый “прямоугольник” вблизи оси ординат соответствует неопределенности  $\langle N_{столкн} \rangle$ .

С целью изучения зависимости эффекта подавления от энергии взаимодействия, факторы ядерной модификации были измерены при меньшей энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  ГэВ. На рисунке 4 представлены факторы, измеренные для легких адронов, в столкновениях ядер меди и золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  ГэВ. В области промежуточных поперечных импульсов выход протонов избыточен, а для  $\phi$ -мезонов подавление отсутствует. Выход  $\pi^0$ -мезонов подавлен как в области промежуточных, так и больших поперечных импульсов. Поведение факторов ядерной модификации  $R_{AA}$ , измеренных при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  ГэВ, аналогично поведению  $R_{AA}$  в ядро-ядерных взаимодействиях при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ (рис. 2). При этом абсолютные значения факторов  $R_{AA}$  отличаются от значений, полученных при энергии взаимодействия ядер  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ.

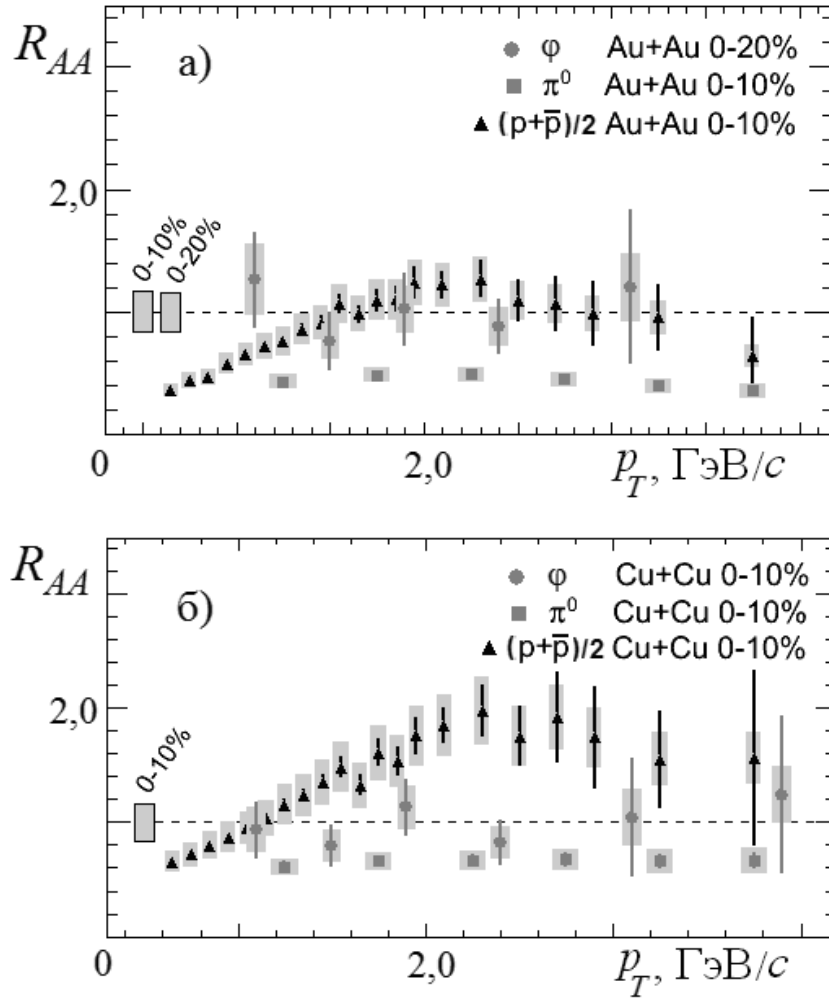


Рис. 4. Зависимость факторов ядерной модификации  $R_{AA}$  от поперечного импульса адронов  $p_T$ , измеренная для  $\phi$ -мезонов (точки),  $\pi^0$ -мезонов (квадраты) и протонов (треугольники) в центральных: а) Au+Au и б) Cu+Cu

взаимодействиях при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  ГэВ. Пустые “прямоугольники” вблизи оси ординат соответствуют

неопределенностям  $\langle N_{столки} \rangle$ .

### 3. Заключение

В работе представлены факторы ядерной модификации для лёгких адронов, измеренные в d+Au, Cu+Cu и Au+Au столкновениях при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  и 200 ГэВ. Факторы ядерной модификации  $R_{AA}$  измерены для большой выборки адронов, обладающих различными кварковыми составами и массами. Измерения проводились при различной центральности столкновений.

Измерения, проведенные в столкновениях ядер дейтерия и ядер золота при энергии  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ на эксперименте ФЕНИКС, показали зависимость эффекта Кронина от типа рождающихся частиц. Объяснение эффекта, как возникающего в результате многократного мягкого перерасеяния партонов в начальном состоянии [12,13], по-видимому, является недостаточно полным и требует введения дополнительных механизмов, одним из которых может являться рекомбинация партонов в конечном состоянии [14,15].

Факторы ядерной модификации, измеренные в столкновениях ядер меди и ядер золота при одной и той же энергии ( $\sqrt{s_{NN}} = 62.4$  ГэВ или  $\sqrt{s_{NN}} = 200$  ГэВ), хорошо согласуются друг с другом при одинаковом числе нуклонов, участвующих во взаимодействии. В области больших поперечных импульсов измеренные значения факторов ядерной модификации находятся в соответствии с предположением об энергетических потерях жёстко рассеянных партонов. В области промежуточных поперечных импульсов факторы ядерной модификации различаются для различных адронов. Одним из возможных объяснений является рекомбинация партонов в конечном состоянии – барионы, состоящие из трех валентных кварков, получают большую прибавку к поперечному импульсу, чем мезоны, состоящие из двух [14,15].

По-видимому, подобный подход можно применить и для объяснения различной степени подавления  $\pi^0$  и  $\phi$ -мезонов. Меньшая степень подавления для  $\phi$ -мезонов, состоящих из  $s$  и  $\bar{s}$  кварков, объясняется доминированием рекомбинации тепловых партонов в большей области по поперечному импульсу, чем для лёгких мезонов [20].

**ЛИТЕРАТУРА**

- [1] G. Baym. Nucl. Phys. A **698**, 23 (2002);
- [2] K. Adcox *et al.*, NIM **A499**, 469 (2003);
- [3] K. Adcox *et al.*, Nucl. Phys. A **757**, 184(2005) ;
- [4] Z. Fodor, S.D. Kats, JHEP **050**, 10(2004);
- [5] S.S. Adler *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 072301(2003);
- [6] S.S. Adler *et al.*, Phys. Rev. C. **75**, 024909(2007);
- [7] M. Gyulassy and M. Plummer, Phys. Lett. B. **243**, 432(1990);
- [8] W.M. Geist *et al.*, Phys. Rep. **197**, 263(1990);
- [9] N.A. McCubbin, Rept. Prog. Phys. **44**, 1027(1981);
- [10] C. Wong, World Scientific Pub Co Inc., ISBN 9810202636, 1994.
- [11] R.J. Glauber, G. Matthiae, Nucl. Phys. B. **21**, 135(1970);
- [12] J.W. Cronin, H.J. Frisch, Phys. Rev. D. **11**, 3105(1975);
- [13] D. Antreasyan, J.W. Cronin, Phys. Rev. D. **19**, 764(1979);
- [14] R.C. Hwa, C.B. Yang, Phys. Rev. Lett. **93**, 082302(2004);
- [15] R.C.Hwa, C.B. Yanf, Phys. Rev. C. **70**, 037901(2004);
- [16] R. Baier *et al.*, Phys. Lett. B. **345**, 277(1995);
- [17] R. Baier *et al.*, Nucl. Phys. B. **483**, 291(1997);
- [18] K. Gallmeister *et al.*, Phys. Rev. C. **67**, 044905(2003);
- [19] W. Cassing *et al.*, Nucl. Phys. A. **735**, 277(2004);
- [20] R.C. Hwa, C.B. Yang, Phys. Rev. C. **75**, 054904(2007);

**ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ПОТЕНЦИАЛА ЭЛЕКТРОННОГО ЭКРАНИРОВАНИЯ РЕАКЦИИ  $d(d,n)^3\text{He}$  В ДЕЙТЕРИДАХ МЕТАЛЛОВ**

В. М. Быстрицкий<sup>1</sup>, Вит. М. Быстрицкий<sup>2</sup>, Я. Возняк<sup>3</sup>, С.Гази<sup>4</sup>, Й. Гуран<sup>4</sup>, Г. Н. Дудкин<sup>5</sup>, А.П. Кобзев<sup>1</sup>, Б. А. Нечасев<sup>5</sup>,  
В. Н. Падалко<sup>5</sup>, С. С. Паржицкий<sup>1</sup>, Ф.М. Пеньков<sup>6</sup>, Ю.Ж. Тулеушев<sup>6</sup>, А.В. Филиппов<sup>1</sup>, М. Филипович<sup>7</sup>

<sup>1</sup>*Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна, Россия*

<sup>2</sup>*Department of Physics and Astronomy, University of California, Irvine, USA*

<sup>3</sup>*Faculty of Physics and Applied Computer Sciences, AGH, University of Science and Technology, Cracow, Poland*

<sup>4</sup>*Institute of Electrical Engineering SAS, Bratislava, Slovakia*

<sup>5</sup>*Физико-технический институт Национального исследовательского Томского политехнического университета, 634028 Томск, Россия*

<sup>6</sup>*НЯЦ Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан*

<sup>7</sup>*Faculty of Fuels and Energy, AGH, University of Science and Technology, Cracow, Poland.*

В ядерной астрофизике большое значение имеет понятие электронного экранирования ядерных реакций звездных циклов. Этот вопрос рассматривался в физике плазмы применительно к астрофизической плазме при различных плотностях и температурах, например [1-3], при этом использовалась плазменная модель Дебая.

При энергии столкновения ядер ниже высоты кулоновского барьера сечения ядерных реакций в случае взаимодействия «голых» ядер можно представить в виде произведения барьерного фактора (фактора Гамова), ответственного за кулоновское отталкивание взаимодействующих ядер, и астрофизического  $S$ -фактора [1]

$$\sigma_b(E) = \frac{S(E)}{E} \exp(-2\pi\eta), \quad 2\pi\eta = \frac{2\pi \cdot Z_1 Z_2 e^2}{h\nu} = 31.29 \cdot Z_1 Z_2 (\mu/E)^{1/2}. \quad (1)$$

Здесь:  $\eta$  – параметр Зоммерфельда;  $Z_1$  и  $Z_2$  – заряды взаимодействующих частиц во входном канале;  $\mu$  – приведенная масса взаимодействующих частиц в а.е.м.;  $E$  – энергия взаимодействия в системе центра масс, выраженная в кэВ. В случае нерезонансной реакции взаимодействия «голых» ядер астрофизический  $S$ -фактор является функцией слабо зависящей от энергии.

Электронная экранировка приводит к уменьшению энергии взаимодействия двух ядер на некоторую величину  $U_e$  и соответственно увеличивает эффективную энергию столкновения на эту же величину. Из-за этого вероятности протекания термоядерных реакций в звездной плазме будут больше на величину, определяемую Больцмановским

фактором  $\sim \exp\left(\frac{U_e}{k_B \cdot T}\right)$ . В частности, скорости термоядерных реакций  $\langle n\nu\sigma \rangle$  в плазме с ядерной плотностью  $n$  и

температурой  $T$ , определяющей относительную скорость ионов  $v$ , увеличиваются на фактор  $\sim \exp\left(\frac{U_{e,D}}{k_B \cdot T}\right)$  [2] из-за

дебаевского экранирования с энергией  $U_{e,D} = \frac{e^2 Z_1 Z_2}{R_D}$ . То есть:

$$\langle nv\sigma_{plasma} \rangle \approx \langle nv\sigma_b \rangle f_{plasma} : f_{plasma} = \exp\left(\frac{Z_1 \cdot Z_2 \cdot e^2}{k_B \cdot T \cdot R_D}\right), \quad R_D = \left(\frac{k_B T}{4\pi e^2 n_e}\right)^{\frac{1}{2}}, \quad (2)$$

где  $k_B$  – постоянная Больцмана,  $n_e$  – электронная плотность, а  $f_{plasma} \geq 1$  – поправочный фактор, возникающий за счет электронного экранирования ядерной реакции в звездной плазме.

Согласно оценкам по формуле (2), поправочный фактор для центральной части Солнца (слабо связанная плазма) составляет около 1.04 [2]. Однако поправочный фактор для скоростей ядерных реакций, протекающих в звездных системах типа, Белые и Коричневые Карлики или Планетарные Туманности (сильно связанная плазма), может быть гораздо выше [3]. Таким образом, для понимания процессов, протекающих в звездах, и для их количественных расчетов, необходимо изучение механизма экранирования ядерных реакций в лабораторных условиях.

В работе [3] впервые было предложено использовать металлические мишени, насыщенные дейтерием, для исследования механизма электронного экранирования ядерных реакций, протекающих в звездах. Аргументация заключалась в следующем: в металлах достаточно большая плотность электронов проводимости ( $10^{22}$ - $10^{23}$  см<sup>-3</sup>); большинство металлов хорошо поглощает водород, особенно палладий, титан, ванадий; реакции  $d(d,p)t$  и  $d(d,n)^3He$  имеют достаточно большое сечение в области энергий пика Гамова [4].

Для реакций, изучаемых в лаборатории, где мишень представляет собой атомную или молекулярную (газовые или твердотельные мишени) среду, а налетающая частица положительно заряженный ион, эффект электронного экранирования взаимодействующих ядер записывается в виде, предложенном в [5]:

$$\sigma_{lab}(E) = \sigma_b(E + U_e) = f_{lab}(E) \cdot \sigma_b(E), \quad f_{lab} = \exp(\pi\eta(E)U_e / E) \quad (\text{при } U_e \ll E). \quad (3)$$

В борновском приближении, для реакций  $d(d,p)t$  и  $d(d,n)^3He$  потенциал экранирования равен 27.2 эВ. Это значение близко к значению потенциала экранирования  $25 \pm 5$  эВ для реакции  $d(d,p)t$ , найденного экспериментально для газовой дейтериевой мишени [6].

В течение последних 10 лет различными группами был проделан ряд экспериментов по изучению данного эффекта с использованием дейтерированных металлических мишеней [7-15]. В научной литературе даже появился термин что металлы - это “a plasma of the poor man” [16] Наиболее интенсивно проблемой электронного экранирования термоядерных реакций занимаются 2 европейские группы: Berlin group (эксперименты выполняются на ускорителе ионов Берлинского технического университета); LUNA group (Laboratory Underground for Nuclear Astrophysics). При сравнении результатов работ этих групп для некоторых из них наблюдается расхождения между собой. В частности, такое утверждение относится к результатам, полученным с мишенями из  $ZrD_2$  и  $TiD_2$ , однако для мишени из дейтерированного тантала результаты обеих групп находятся в согласии  $U_e = 309 \pm 12$  эВ – LUNA group [7],  $322 \pm 15$  эВ – Berlin group [9].

Общий вывод на основании результатов экспериментов, выполненных двумя группами, сводится к следующему – потенциал экранирования для реакции  $d(d,p)^3H$ , протекающей в большинстве мишеней из дейтерированных металлов, превышает более чем на порядок соответствующую величину, полученную в экспериментах с газовыми или диэлектрическими мишенями. В то же время экспериментальные результаты более чем в 2 раза превышают расчетные значения для дейтерированных металлов, полученные по стандартным атомным моделям [3,17].

Тот факт, что эффект электронного экранирования наблюдается в дейтерированных металлах и слабо проявляется в диэлектриках позволил интерпретировать его LUNA group как влияние квазисвободных электронов, присутствующих в металлах, в рамках плазменной модели Дебая [12]. Эта модель, как уже было сказано выше, предсказывает радиус экранирования порядка радиуса Дебая, (2), где  $T$  – температура свободных электронов,

$n_e = n_{eff} \rho_a$ ,  $n_{eff}$  – эффективное число валентных электронов на один атом металла,  $\rho_a$  – атомная плотность. При комнатной температуре и  $n_{eff} \sim 1$  радиус электронного экранирования примерно в 10 раз меньше чем радиус Бора атома водорода. При условии взаимодействия двух дейтронов на расстоянии радиуса Дебая, величина потенциала экранирования  $U_e \approx 300$  эВ. Таким образом, механизмом увеличения сечения ядерных реакций при ультранизких энергиях взаимодействия, в пределах этой простой модели, является Дебаевское экранирование взаимодействующих ядер электронными облаками на расстоянии  $< R_D$ . В модели Дебая зависимость эффекта электронного экранирования от температуры  $U_e \sim T^{-1/2}$ . В работе [13] эта зависимость была подтверждена экспериментально.

Ранее нами были выполнены измерения сечений и астрофизических S- факторов реакции  $d(d,n)^3He$ , в диапазоне энергий 7-12 кэВ, при комнатной температуре, на дейтерированных металлических мишенях  $ZrD_2$ ,  $TiD_2$  [18] и  $Ta_2D$  [19] и определены потенциалы электронного экранирования. Для мишени  $Ta_2D$  наш результат ( $U_e = 313 \pm 58$  эВ) находится в хорошем согласии с результатами LUNA group и Berlin group.

Дейтерированный цирконий: наш результат-  $U_e=157\pm 43$  эВ; LUNA group [12] -  $\leq 40$  эВ; Berlin group [9] -  $U_e=297\pm 8$  эВ, [15] -  $U_e=319\pm 3$  эВ. Дейтерированный титан: наш результат -  $U_e=125\pm 34$  эВ; LUNA group [12] -  $\leq 30$  эВ; Berlin group – не измеряла.

Расхождение экспериментальных данных, полученных разными группами, может быть связано со способом получения мишеней с определенной стехиометрией и с условиями проведения эксперимента. Обе европейские группы получали мишени с определенной стехиометрией методом имплантации ускоренных дейтронов в мишень, используя пучок дейтронов с более высокой энергией. Такой метод может приводить к неконтролируемому увеличению плотности насыщения дейтерием слоя на поверхности, либо в каком-то слое вблизи поверхности, что может давать кажущееся увеличение сечения реакции, а, следовательно, и кажущееся увеличение энергии экранирования. Это может происходить потому, что сечение реакции определяется в результате расчета, где присутствует величины потерь энергии налетающего дейтрона по слоям мишени, и, предполагается, что насыщение слоев дейтерием равномерно и одинаково. С другой стороны, слишком малые величины потенциалов экранирования, полученные экспериментально, могут быть объяснены трансформацией начального энергетического распределения дейтронов, либо за счет окисления поверхности мишени, либо за счет появления углеродной пленки, адсорбированной на поверхности мишени во время проведения эксперимента.

Для исследования зависимости от температуры потенциала экранирования была применена та же установка, что и в предыдущих исследованиях [18, 20].

Для устранения возможных причин расхождения экспериментальных результатов нами были предприняты дополнительные меры:

1. Как и раньше использовались металлические дейтерированные мишени, полученные методом магнетронного распыления соответствующего металла в атмосфере дейтерия. При этом мишени приготавливались с известной стехиометрией. Стехиометрия создаваемых мишеней задавалась технологией их получения и контролировалась методом рентгеновской дифрактометрии. Измерение распределения концентрации дейтерия по глубине мишеней из  $ZrD_2$  и  $TiD_2$  осуществлялась методом детектирования дейтронов отдачи (ERD-метод) с использованием пучка  $\alpha$ -частиц с энергией 2.3 МэВ, создаваемого с помощью ускорителя Ван де Граафа лаборатории нейтронной физики ОИЯИ. Результаты измерений свидетельствовали о равномерном распределении концентрации дейтерия по глубине слоев  $ZrD_2$  и  $TiD_2$  (толщина слоя составляла 20 нм),  $C_D=1.98\pm 0.10$  ( $C_D = N_D/N_{Zr,Ti}$  – относительная концентрация атомов дейтерия, равная отношению числа атомов дейтерия к числу атомов циркония или титана, находящихся в единице объема).

2. Чистота поверхности мишеней в течении эксперимента исследовалась с использованием метода кварцевых весов и Оже – спектрометрии [21]. С помощью метода кварцевого резонатора получены данные о темпе нарастания адсорбированной пленки на мишени при различных режимах работы ускорителя. Чувствительность метода кварцевого резонатора составляет  $\Delta M = 1.3 \cdot 10^{-8}$  г/см<sup>2</sup> [22]. Результаты измерений использовались при анализе экспериментальных данных для корректного учета процесса ионизационных потерь энергии дейтронов в «паразитном» слое до момента их попадания в слой из  $ZrD_2$  или  $TiD_2$ .

Экспериментальная установка включала в себя: плазменный импульсный ускоритель Холла (Томский политехнический университет); 8 пластических сцинтилляционных детекторов для регистрации нейтронов из  $dd$ -реакции, с энергией 2.5 МэВ; систему подогрева металлических мишеней в диапазоне температур 20÷300 °С (точность определения температуры 5 %); два типа твердотельных мишеней - из дейтеридов циркония и титана; диагностическую аппаратуру для контроля параметров пучка дейтронов, падающих на мишень. Вся информация, поступающая с детекторов нейтронов, а также с диагностической аппаратуры, выводилась на цифровые запоминающие осциллографы ТЕКТРОНИХ.

Мишени из  $ZrD_2$ ,  $TiD_2$  представляли собой диски из нержавеющей стали диаметром 97мм и толщиной 2 мм, на одну из торцевых поверхностей которых был нанесен слой из  $ZrD_2$  или  $TiD_2$  методом магнетронного распыления циркония или титана в среде дейтерия. Толщина нанесенного слоя составляла  $\sim 1.20$  мкм, при неоднородности толщины слоя по площади не более 5 %. Длительность импульса пучка ускоренных дейтронов, генерированного ионным источником Холла, составляла  $\sim 10$  мкс при частоте следования импульсов  $\sim 5 \cdot 10^{-2}$  Гц и интегральном числе дейтронов в импульсе  $\sim 10^{14}$ . Количество дейтронов, взаимодействовавших с мишенью в каждом импульсе ускорителя, определялось интегрированием тока мишени. Точность измерения тока мишени не хуже 1 %. Для подавления эмиссии электронов из мишени, на сетку  $S$  (прозрачность 93%), находящуюся на расстоянии 1 см перед мишенью, подавался потенциал  $U_s = -100$  В.

Энергетический разброс дейтронного пучка определялся с помощью электростатического многосеточного спектрометра, расположенного за мишенью, и составлял 14÷12 % в диапазоне энергий 7÷12 кэВ. Для попадания дейтронов в спектрометр в мишени было проделано 8 отверстий диаметром 3 мм, расположенных равномерно по площади мишени. Это давало возможность получать информацию об энергетическом распределении дейтронов на всей поверхности мишени. Регистрация нейтронов из  $dd$ -реакции осуществлялась с помощью 8 сцинтилляционных пластических детекторов с размерами 100×100×380 мм, расположенных вокруг мишенной камеры ускорителя. Эффективность регистрации нейтронов при пороге регистрирующей аппаратуры 0.16 МэВee (в единицах эквивалентной по световыходу энергии электронов) составляла  $\epsilon=0.230 \pm 0.013$ . Калибровка детекторов производилась с помощью стандартных источников  $\gamma$ -квантов ( $^{137}Cs$ ,  $^{60}Co$ ) и нейтронов - ( $Am-Be$ ),  $^{252}Cf$ .

Выходы нейтронов с энергией 2.5 МэВ из реакции  $d(d,n)^3He$  были измерены для мишеней  $ZrD_2$  и  $TiD_2$ , при температурах 20 °С, 60 °С, 200 °С в диапазоне энергий 7÷12 кэВ, с шагом 1 кэВ. Выражение, описывающее экспериментально измеренный выход нейтронов из  $dd$ -реакции, имеет вид:

$$N_n = N_d n_t \varepsilon_n \int_0^\infty F(E) dE \int_0^\infty \frac{e^{-2\pi\eta} S(E')}{E'(E, x')} dx', \quad (4)$$

где  $F(E)$  – функция распределения дейтронов, падающих на мишень, по энергии столкновения их с дейтронами мишени;  $E$  – энергия столкновения дейтронов в с.ц.м.;  $\varepsilon_n$  – эффективность регистрации нейтронов экспериментальной установкой;  $n_t$  – плотность дейтронов мишени;  $E'(E, x')$  – энергия столкновения дейтронов пучка с дейтронами мишени (в с.ц.м.) после прохождения слоя мишени толщиной  $x'$  (при определении данной величины использовались значения удельных ионизационных потерь энергии дейтронов  $dE/dx$  в мишенях из  $ZrD_2$ ,  $TiD_2$ , вычисленные по программе SRIM [23]);  $N_d$  – полное число дейтронов, попавших в мишень;

$S(E') = S_b(E') \cdot f_{lab}(E')$  – астрофизический  $S$ -фактор для  $dd$ -реакции, соответствующий энергии столкновения дейтронов  $E'(E, x')$ ;  $f_{lab}(E')$  – фактор усиления.

Метод определения значений потенциалов электронного экранирования взаимодействующих дейтронов, основан на измерении зависимостей выхода нейтронов из реакции  $d(d,n)^3He$  от энергии столкновения дейтронов с последующей их аппроксимацией аналитическим выражением (4). При этом использована параметризация сечения  $dd$ -реакции и астрофизического  $S$  – фактора (формулы (1), (3)) и расчетные значения  $S$  – фактора в случае взаимодействия “голых” дейтронов [24]. В этом случае потенциал электронного экранирования является единственным варьируемым параметром. В системе центра масс сталкивающихся дейтронов, с учетом потерь энергии дейтронов в мишени, реальный диапазон энергий столкновения составляет 3.26÷5.38 кэВ, рис. 1.

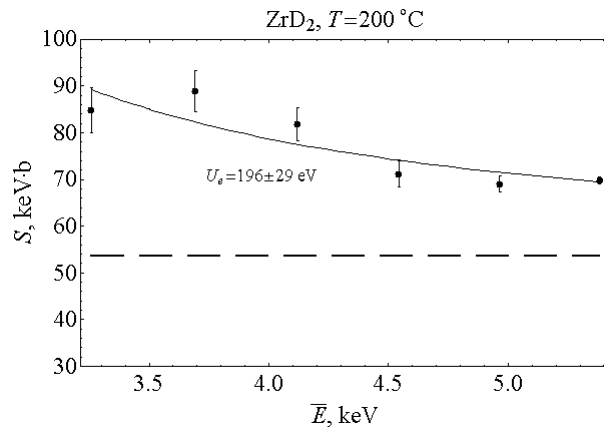
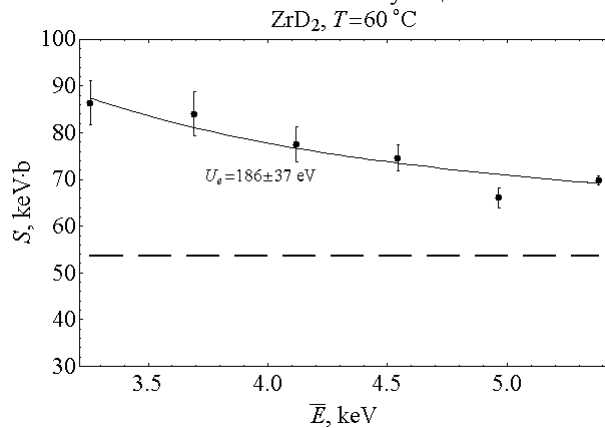
Величины  $U_e$  в зависимости от температуры приведены в таблице.

Таблица. Данные по температурной зависимости потенциалов экранирования,  $U_e$  (эВ)

Мишень		Температура, °C		
		20	60	200
Zr	LUNA group[12, 13]	≤40	–	205±70
	Berlin group [11]	297±8	–	–
	Berlin group [15]	319±3	–	–
	Теор. оценка [17]	112.4	–	–
	Наши результаты	205±37	186±37	196±29
Ti	LUNA group [12, 13]	≤30	≤50 (50 °C)	290±65
	Теор. оценка [17]	≈100	–	–
	Наши результаты	125±34	133±47	113±38

Ошибки значений потенциалов электронного экранирования включают в себя ошибки, связанные с неточным знанием: функции распределения дейтронов по глубине мишени; функции энергетического распределения дейтронов падающих на мишень; зависимости удельных ионизационных потерь энергии дейтронов в области ультранизких энергий столкновения дейтронов; числа дейтронов падающих на мишень и эффективности регистрации нейтронов экспериментальной установкой. Там же приведены результаты LUNA group, Berlin group и теоретические оценки.

Таким образом, можно утверждать, что наши результаты говорят об отсутствии эффекта температурной зависимости потенциала электронного экранирования для реакции  $d(d,n)^3He$  на мишенях  $ZrD_2$  и  $TiD_2$ . Данный вывод не подтверждает правомерность применения плазменной модели Дебая для объяснения как характера поведения потенциалов электронного экранирования для  $dd$  – реакции от температуры в дейтериде циркония и титана, так и абсолютных значений соответствующих величин.



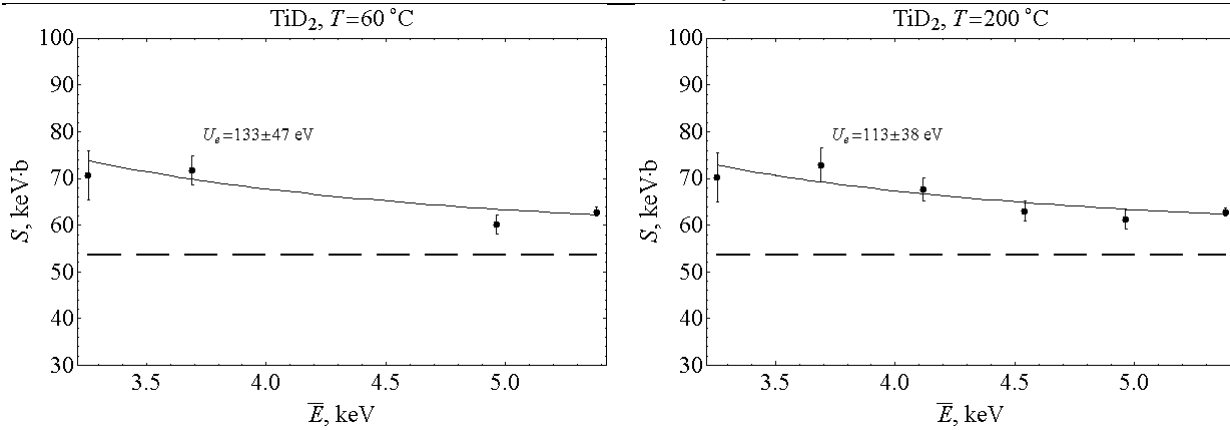


Рис. 1 Мишени  $\text{ZrD}_2$ ,  $\text{TiD}_2$ : зависимости астрофизических S- факторов от энергии столкновения дейтронов в системе центра масс при 60 и 200 °С. Пунктирная линия – расчетная зависимость S- фактора для dd – реакции в случае взаимодействия “голых” дейтронов. Сплошные линии - расчетные зависимости S – факторов для dd - реакции от энергии столкновения дейтронов, полученные при температурах мишени 60 и 200 °С с использованием найденных значений потенциалов электронного экранирования  $U_e$  (соответствующие значения  $U_e$  указаны непосредственно на графиках).

Работа выполнена при поддержке гранта полномочного представителя Польши в ОИЯИ.

1. E. E. Salpeter, Phys. Rev. 88, 547 (1952).
2. E. E. Salpeter, Austr. J. Phys. 7, 373 (1954)
3. S. Ichimaru, Rev. Mod. Phys. 65, 255 (1993)
4. G. Gamow and E. Teller, Phys. Rev. 53, 608 (1938)
5. H. J. Assenbaum, K. Langanke and C. Rolfs, Z. Phys. A327, 461 (1987).
6. U. Greife, F. Gorris, M. Junker et al., Z. Phys. A351, 107 (1995)
7. F. Raiola, P. Migliardi, G. Gyurky et al., Eur. Phys. J. A13, 377 (2002)
8. J. Kasagi, H. Yuki, T. Baba et al., J. Phys. Soc. Jpn. 71, 288 (2002)
9. K. Czerski, A. Huke, P. Heide, G. Schiwietz et al., Nucl. Instr. Meth. in Physics Research B193, 183 (2002)
10. C. Bonomo, G. Fiorentini, Z. Fulop, et al., Nucl. Phys. A719, 37 (2003)
11. K. Czerski, A. Huke, P. Heide, et al., Europhys. Lett. 68, 363 (2004)
12. F. Raiola, L. Gang, C. Bonomo, et al., Eur. Phys. J. A19, 283 (2004)
13. F. Raiola B. Burchard, Zs. Fulop, et al., Eur. Phys. J. A27, 79 (2006)
14. A. Huke, K. Czerski, P. Heide, et al., Nucl. Instr. Methods, B256, 599 (2007)
15. K. Czerski, A. Huke, P. Heide, et al., J. Phys. G. 35, 014012 (2008)
16. F. Strieder, C. Rolfs. Progress in Particle and Nuclear Physics, 59, 562 (2007)
17. K. Czerski, A. Huke, P. Heide et al., Eur. Phys. J. A27, 83 (2006)
18. V. M. Bystritsky, Vit. M. Bystritskii, G. N. Dudkin, et al., Preprint JINR, E15-2010-142, Dubna, 2010; To be published in Physics of Atomic Nuclei 2011.
19. V. M. Bystritsky, Vit. M. Bystritskii, G. N. Dudkin, et al., Submitted to Nuclear Physics, 2011
20. V. M. Bystritsky, V. V. Gerasimov, A. R. Krylov et al., Europ. Phys. J. A36, 151 (2008)
21. Г. Н. Дудкин, В. Л. Каминский, Б. А. Нечаев и др. Известия Вузов. Физика, 53, 10/2, 45, (2010)
22. В. А. Батурич, А. Ю. Карпенко, А. Г. Нагорный, С. А. Пустовойтов, ВАНТ, №1, 165. (2002)
23. <http://srim.org>.
24. H.-S. Bosch, G. M. Hale, Nuclear Fusion, 32, No. 4, 611 (1992)

## МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ $^{239}\text{Pu}$ ТЕПЛОВЫМИ НЕЙТРОНАМИ

Г.А. Абдуллаева, Ю.Н. Коблик, А.Ф. Небесный, В.П. Пикуль  
Институт Ядерной Физики, 100214, Ташкент, Узбекистан, e-mail: [koblik@inp.uz](mailto:koblik@inp.uz)

### ВВЕДЕНИЕ

Изучение процесса деления тяжелых ядер нейтронами связано с решением двух фундаментальных, и до конца не исследованных задач – изучением механизма реакций с нейтронами в широкой области энергий и описанием свойств процесса деления ядер, механизм которого в свою очередь определяется свойствами ядерного вещества в процессе глубокой перестройки от составного ядра до разделения на осколки. Явление деления ядер служит



предметом интенсивных экспериментальных и теоретических исследований. Многолетний интерес к явлению деления связан с его широким практическим применением и важным научным значением.

Экспериментальные исследования направлены на изучение массовых, зарядовых и энергетических распределений продуктов деления (ПД), на механизм формирования которых влияет много факторов, в том числе одно частичные и коллективные взаимодействия, ядерная вязкость, изменение формы ядра при спуске от седловой точки к точке разрыва, рельеф потенциальной энергетической поверхности и др. При низкоэнергетическом делении формирование спектров ПД достаточно хорошо описывается моделью равновесия в точке разрыва [1], моделью малой капли [2], двух-центральной моделью оболочек [3]. Однако полную картину процесса деления пока не дает ни одна из моделей.

Большинство экспериментальных результатов получено радиохимическими методами, которые дают сведения о поздней стадии процесса деления и не позволяют измерить кинетическую энергию и скорость ПД. Инструментальные методики (ионизационные камеры, полупроводниковые детекторы, метод времени пролета и др.) позволяют измерить скорость ПД, но имеют недостаточную массовую разрешающую способность (1,5 - 3 а.е.м.). Более того, сравнение экспериментальных данных, полученных одинаковыми методами, показывает различие в них. Это связано с недостаточной точностью измерений и недостаточной разрешающей способностью экспериментальных установок. Наиболее точные и достоверные результаты получены с использованием метода отклонения ПД в однородных последовательно расположенных электрических и магнитных полях. В настоящее время на горизонтальных каналах исследовательских реакторов работают несколько установок, использующих метод отклонения заряженных частиц в магнитном и электрическом полях. Это масс-спектрометр "LOHENGRIN" в Гренобле (Франция) [4] и масс-спектрометр ИЯФ АН РУз [5]. Кроме того, на реакторе в Гренобле работает время-пролетный спектрометр "Cosi-Fan-Tutte" [6], сочетающий в себе время-пролетную методику, ионизационную камеру и полупроводниковые детекторы. Экспериментальные результаты, полученные на масс-спектрометре "LOHENGRIN" и на время-пролетном спектрометре "Cosi-Fan-Tutte", касающиеся детального изучения ПД легкой группы [7-8], а также на масс-спектрометре ИЯФ АН РУз [9-10] для ПД тяжелой группы дополняют друг друга. Эти спектрометры позволяют выделять нужные энергетический и массовый диапазоны ПД, идентифицировать с высокой точностью массовые числа ПД и определять их кинетические энергии. Использование таких экспериментальных результатов дает возможность провести оценку существующих моделей деления и более качественно описать стадии процесса деления ядер нейтронами.

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ УСЛОВИЯ**

Измерение выходов продуктов деления (ПД) ядер  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами проводилось на масс-спектрометре, расположенном на горизонтальном канале реактора ВВР-СМ ИЯФ АН РУз [10] и разделяющим ПД одновременно по массам  $M$ , кинетическим энергиям  $E_k$  и ионным зарядам  $z^*$ . Поток тепловых нейтронов на мишени составлял величину  $\Phi_T = 2 \times 10^{12}$  н/см<sup>2</sup>·с, а кадмиевое отношение  $\Phi_T/\Phi_0=25$ . В измерениях использовалась мишень из  $^{239}\text{Pu}$  напыленная в вакууме на алюминиевую подложку толщиной 0,5 мм с активным слоем  $40 \times 5$  мм<sup>2</sup> и толщиной  $100 \pm 5$  мкг/см<sup>2</sup>, содержание  $^{239}\text{Pu}$  ~98%.

Детектирование ПД в фокальной плоскости масс-спектрометра осуществлялось полупроводниковыми стриповыми и твердотельными трековыми детекторами, позволяющими одновременно регистрировать до 6-7 выделенных массовых групп ПД. В качестве твердотельными трековыми детекторами использовались стеклянные пластины длиной до 50 мм и высотой 60 мм. После сеанса облучения мишени пластины просматривались под микроскопом с шагом 0,2 мм.

**ОБРАБОТКА И РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ**

Измерение массовых распределений ПД  $^{239}\text{Pu}$  твердотельными детекторами было выполнено в серии установок магнитных полей. На рисунке 1 приведён один из массовых спектров ПД  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами при значении магнитного поля  $H=3147$  Э и напряжении на обкладках электростатического конденсатора  $U = 64390$  В, полученный с помощью твёрдотельного детектора.

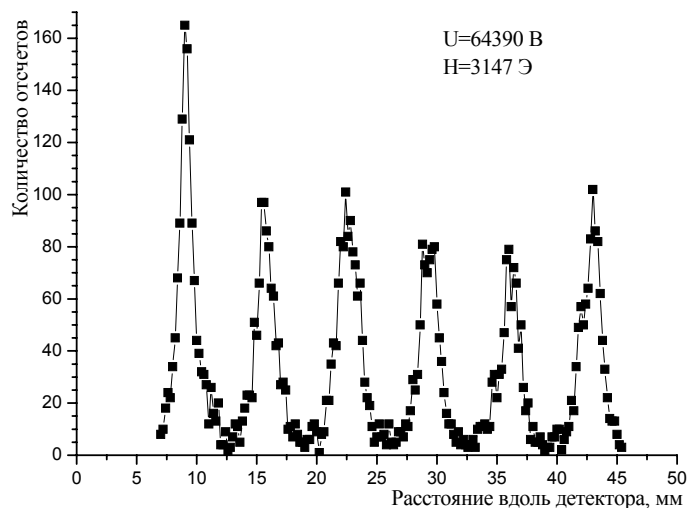


Рисунок 1 - Массовый спектр ПД  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами с твердотельного детектора

Для перехода от линейных размеров детекторных пластин  $L$  в мм к значениям  $M/z^*$  использовалась калибровка фокальной плоскости спектрометра с помощью альфа частиц радиоактивного источника и последующей аппроксимацией экспериментальных значений полиномом вида:

$$M/z^* = 4,50997 + 0,00452L + 1,97242 \cdot 10^{-6} L^2.$$

Измерения выходов ПД  $^{239}\text{Pu}$  выполнены в диапазоне массовых чисел  $A = 75-165$  с фиксированными значениями кинетических энергий  $E_k$  в соответствии с ионными зарядами  $z^* = (14-28)e_0$ . Итоговые результаты измерения распределений ПД  $^{239}\text{Pu}$  для выбранных установок магнитного и электрического полей масс-спектрометра представлены рисунком 2 в координатах ( $M/z^* - \text{Отсчеты}$ ), шкала справа соответствует значениям зарядовых состояний ПД.

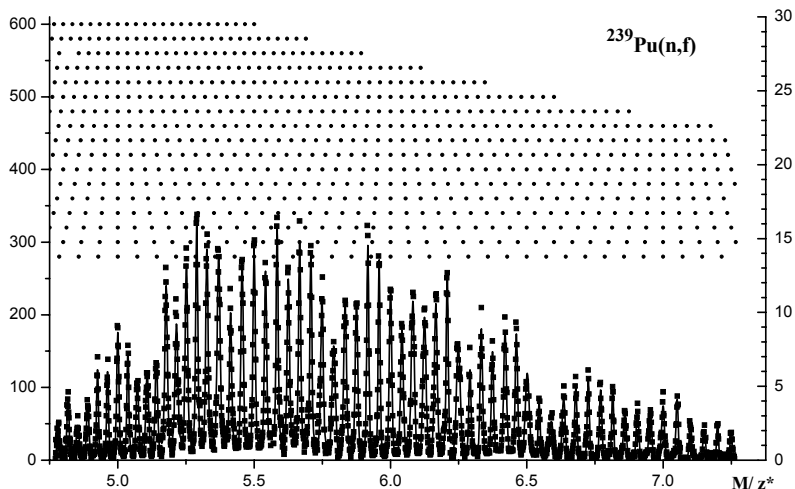


Рисунок 2 – Распределения ПД  $^{239}\text{Pu}$  в координате  $M/z^*$ .

Экспериментальные значения величин отсчетов на рисунке 2 отмечены точками, представлены хорошо выделенными 60 пиками, отвечающими за массовое распределение ПД  $^{239}\text{Pu}$  тепловыми нейтронами. Обработка экспериментального спектра проводилась с помощью известной программы «ORIGIN», обеспечивающей аппроксимацию пика распределением Гаусса с фиксацией положения центра пика (координата  $M/z^*$ ) и числа событий в площади этого пика согласно выражению:

$$y = y_0 + \frac{A}{\omega\sqrt{\pi/2}} \exp\left[-\frac{2(x-x_0)^2}{\omega^2}\right], \quad \omega = \frac{\sigma}{\sqrt{\ln 4}}$$

где  $y_0$  – линия фона,  $A$  - полная площадь под пиком от линии фона,  $x_0$  – центр пика, а,  $\sigma$  - ширина пика на полувысоте.

Разложение на гауссианы выполнено с помощью программы «ORIGIN-7», на рисунке 2 – сплошные кривые. Шкала справа соответствует значениям зарядовых состояний ПД.

Полученные таким образом кумулятивные выходы продуктов деления  $y_i(z^*)$  использовались для расчета полного выхода осколков деления с массой  $A$ :

$$Y_i(A) = \sum_{z^*} y_i(z^*)$$

По этим данным построен график значений выходов  $Y(A)$  для ПД  $^{239}\text{Pu}$  в зависимости от их атомных номеров (рисунок 3, кривая 1). На этом же рисунке для сравнения приведена кривая 2, построенная по теоретическим данным из работы [11].

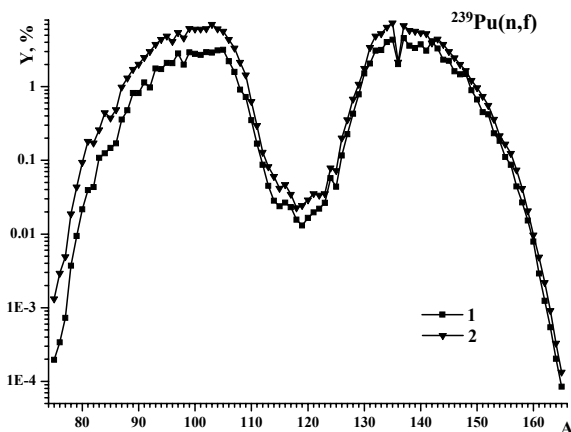


Рисунок 3 – Массовый выход ПД для  $^{239}\text{Pu}$ .

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено экспериментальное исследование массовых выходов фрагментов деления  $^{239}\text{Pu}$  под действием реакторных нейтронов. Максимальный выход продуктов деления наблюдается для ионных зарядов  $q = (22-23)e_0$ . Сравнение с теоретическими данными из работы [11] показывает хорошее согласие для тяжелых фрагментов деления в области массовых чисел  $A = 136-156$ .

### ЛИТЕРАТУРА

1. B.D.Wilkins, E.P.Steinberg, R.R.Chasman, Phys.Rev. C 14, 1832, (1976).
2. W.D.Myers, W.J.Swiatecki, Ann. Phys., 84, 186, (1974).
3. Roy K. Gupta, Particles & Nuclei, v. 8, № 3, 717, (1977).
4. H. Wohlfart, W. Lang et. al., Z. Phys., A287, 153, (1978).
5. C. Schmitt, A.Guessous et al., Nucl. Phys., A430, 21, (1984).
6. E. Moll, H. Schrader et. al., Kerntechnik, v.19, 374, (1977).
7. N. Boucheneb, P. Geltenbort et. al., Nucl. Phys., A502, 261, (1989).
8. I. Tsekhanovich, H.-O. Denschlag et. al., Nucl. Phys., A688, 633, (2001).
9. V.P. Pikul, Yu.N. Koblik et al., J. Nuclear Physics, v.68, №2, 177, (2005).
10. Yu.N. Koblik, V.P. Pikul et. al., Bulletin of RAS Ph., v. 71, №3, 420, (2007).
11. England T. R., B. F. Rider. Evaluation and Compilation of Fission Product Yields. // LA-UR-94-3106. 1994.

### НЕУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ ПРОТОНОВ НА ЯДРЕ $^{15}\text{C}$ В ДИФРАКЦИОННОЙ ТЕОРИИ

Е.Т. Ибраева<sup>1</sup>, М.А. Жусупов<sup>2</sup>, О. Имамбеков<sup>2</sup>, П.М. Красовицкий<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Институт ядерной физики Национального ядерного центра РК, Казахстан, Алматы; <sup>2</sup>Казахский государственный университет им. аль-Фараби, Казахстан, Алматы

Из факта большого сечения одиночного срыва нейтрона в  $^{15}\text{C} + ^{208}\text{Pb}$  упругом рассеянии в [1] сделан вывод о гало структуре ядра  $^{15}\text{C}$ , в котором последний нейтрон, находящийся на некотором удалении от кора  $^{14}\text{C}$ , «растягивает» ВФ  $^{15}\text{C}$ , что и приводит к большей возможности его переноса.

Мы рассчитали дифференциальное сечение (ДС) неупругого рассеяния протонов на уровень  $J^\pi = 5/2^+$  ядра  $^{15}\text{C}$  при промежуточных энергиях 0.2, 0.6 и 1.0 ГэВ/нуклон в рамках глауберовской дифракционной теории. Базисные волновые функции (ВФ) в модели оболочек представлены следующей конфигурацией: две дырки в 1р-оболочке плюс один нейтрон в 1d-оболочке  $|(1s)^4(1p)^{10}(1d)^1\rangle$  для возбужденного состояния (для основного состояния  $^{15}\text{C}$  конфигурация  $|(1s)^4(1p)^{10}(2s)^1\rangle$ ). Главное отличие ВФ основного и первого возбужденного состояний ядра  $^{15}\text{C}$  в расположении последнего нейтрона: если он заполняет  $2s_{1/2}$ -орбиталь, среднеквадратичный радиус последнего нейтрона и полная нейтронная плотность резко увеличиваются по сравнению с тем случаем, когда последний нейтрон заполняет  $1d_{5/2}$ -орбиталь ( $R_h = 3.845$  Фм для  $1d_{5/2}$ ,  $R_h = 5.666$  Фм для  $2s_{1/2}$  [2]), хотя энергии уровней этих орбиталей и полные энергии связи подобны ( $(B/A) = 7.147$  МэВ,  $\varepsilon = 1.058$  ( $1d_{5/2}$ ) и  $(B/A) = 7.155$  МэВ,  $\varepsilon = 1.065$  ( $2s_{1/2}$ ) [2]). Причина в том, что среднеквадратичный радиус определяется детальным поведением ВФ. На  $2s_{1/2}$ -орбитали у ВФ имеется один дополнительный узел, что определяет большую растянутость ВФ по координате по сравнению с  $1d_{5/2}$ -орбиталью. Хорошо известно, что одночастичная энергия увеличивается с увеличением числа узлов. Нуклон гало предпочитает орбитали с дополнительными узлами и низким угловым моментом, что обеспечивает нуклону большую энергию связи и больший радиус.

Вероятность рассеяния частицы на ядре с ВФ  $\Psi_i^{JM_j}$  с переходом в конечное состояние  $\Psi_f^{JM_j}$  выражается через амплитуду рассеяния, которая в глауберовской дифракционной теории записывается следующим образом [3]:

$$M_{if}(\vec{q}) = \sum_{M_j M_j'} \frac{ik}{2\pi} \int d^2\vec{\rho} \prod_{i=1}^A d\vec{r}_i \exp(i\vec{q}\vec{\rho}) \langle \Psi_f^{JM_j}(\vec{r}_i) | \Omega | \Psi_i^{JM_j}(\vec{r}_i) \rangle, \quad (1)$$

где  $\vec{\rho}$  – прицельный параметр;  $\vec{r}_i(\vec{\rho}_i, z_i)$  – одночастичные координаты нуклонов, от которых зависят ВФ  $\Psi_i^{JM_j}$ ,  $\Psi_f^{JM_j}$  в начальном и конечном состояниях,  $A$  – число нуклонов в ядре,  $\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}'$  – переданный в реакции импульс,  $\vec{k}$ ,  $\vec{k}'$  – импульсы налетающего и вылетевшего протона.

Оператор  $\Omega$  представляет собой ряд многократного рассеяния

$$\Omega = 1 - \prod_{i=1}^A (1 - \omega_i(\vec{\rho} - \vec{\rho}_i)) = \sum_{i=1}^A \omega_i - \sum_{i < j} \omega_i \omega_j + \sum_{i < j < k} \omega_i \omega_j \omega_k - \dots (-1)^{A-1} \omega_1 \omega_2 \dots \omega_A, \quad (2)$$

где  $\omega_i$  – профильные функции

$$\omega_i(\vec{\rho} - \vec{\rho}_i) = \frac{1}{(2\pi i k)} \int d\vec{q}_i \exp(-i\vec{q}_i(\vec{\rho} - \vec{\rho}_i)) f_{pN}(q_i), \quad (3)$$

$f_{pN}(q)$  – элементарные  $pN$ - амплитуды

$$f_{pN}(q_i) = \frac{k\sigma_{pN}}{4\pi} (i + \varepsilon_{pN}) \exp\left(-\frac{\beta_{pN}^2 q_i^2}{2}\right). \quad (4)$$

Значения параметров при разных энергиях представлены в [4].

Оболочечную ВФ представим в виде

$$\Psi_{i,f}^{JM_J}(\vec{r}_i) = \Psi_{n_0 l_0 m_0}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4) \Psi_{n_1 l_1 m_1}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14}) \Psi_{n_2 l_2 m_2}(\vec{r}_{15}), \quad (5)$$

где  $n_i l_i m_i$  есть квантовые числа (главное, орбитальное и магнитное) соответствующей оболочки. Тогда  $s$ - и  $d$ -компоненты ВФ запишутся:

$$\Psi_i^{JM_J}(\vec{r}_i) = |(1s)^4 (1p)^{10} (2s)^1\rangle = \sum_m \Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4) \Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}), \quad (6)$$

$$\Psi_f^{JM_J}(\vec{r}_i) = |(1s)^4 (1p)^{10} (1d)^1\rangle = \sum_{m_i m_2} \Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4) \Psi_{11m_1}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14}) \Psi_{22m_2}(\vec{r}_{15}), \quad (7)$$

где каждая из функций есть произведение одночастичных функций:  $\Psi(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots) = \prod_i \Psi(\vec{r}_i)$ .

Подставив ВФ начального (6) и конечного (7) состояний в (1), запишем матричный элемент неупругого рассеяния

$$M_{if}(\vec{q}) = \frac{ik}{2\pi} \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int \langle \Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4) \Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14}) \Psi_{22m}(\vec{r}_{15}) | \Omega | \Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4) \Psi_{11m'}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}) \rangle \prod_{i=1}^{15} d\vec{r}_i \quad (8)$$

Подстановка ряда многократного рассеяния (2) в амплитуду (1) и последующие интегрирования его по прицельному параметру  $d\vec{\rho}$  и импульсам, переданным в каждом акте рассеяния  $d\vec{q}_i, \dots, d\vec{q}_k$ , приводит к следующему результату:

$$\Omega = \frac{2\pi}{ik} f_{pN}(q) \sum_{i=1}^{15} \tilde{\omega}_i - \left( \frac{2\pi}{ik} f_{pN}\left(\frac{q}{2}\right) \right)^2 \sum_{i < j=1}^{15} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_j + \dots, \quad (9)$$

где

$$\sum_{i=1}^{15} \tilde{\omega}_i = \sum_{i=1}^{15} \exp(i\vec{q}\vec{\rho}_i), \quad \sum_{i=1}^{15} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_j = \sum_{i < j=1}^{15} \exp\left(i\frac{\vec{q}}{2}(\vec{\rho}_i + \vec{\rho}_j)\right) \delta(\vec{\rho}_i - \vec{\rho}_j). \quad (10)$$

При выводе формулы (9) в амплитуде  $f_{pN}(q)$  мы пренебрегаем разностями  $(\vec{q}_i - \vec{q}_j)$  по сравнению с  $\vec{q}$ ,  $\frac{\vec{q}}{2}$  (поскольку известно, что амплитуда нуклон-нуклонного взаимодействия является функцией, плавно меняющейся с изменением аргумента  $q$ ), что позволяет вынести из-под знака интеграла амплитуды  $f_{pN}(q)$ ,  $f_{pN}^2\left(\frac{q}{2}\right)$ . Подставив

в (8) первый член ряда многократного рассеяния (9) и разделив сумму на операторы, действующие на нуклоны находящиеся в разных оболочках  $\sum_{i=1}^{15} \tilde{\omega}_i = \sum_{i=1}^4 \tilde{\omega}_i + \sum_{i=5}^{14} \tilde{\omega}_i + \tilde{\omega}_{15}$ , запишем матричный элемент однократного

рассеяния:

$$M_{if}^{(1)}(\vec{q}) = \frac{k}{k'} f_{pN}(q) \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4)|^2 |\Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14})|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}) \left( \sum_{i=1}^4 \tilde{\omega}_i + \sum_{i=5}^{14} \tilde{\omega}_i + \tilde{\omega}_{15} \right) \prod_{i=1}^{15} d\vec{r}_i. \quad (11)$$

Из-за ортогональности функций  $\Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15})$  и  $\Psi_{200}(\vec{r}_{15})$  и из-за того, что оператор действует только на одну координату (см. первую из формул (10)), интегралы от первых двух слагаемых будут равны нулю, остается только последний член с оператором, действующим на нуклон, находящийся в  $d$ -оболочке. Заменяв формально плоские вектора  $\vec{\rho}_i$  (от которых зависят  $\tilde{\omega}$ ) на трехмерные  $\vec{r}_i$ , как это сделано в [3], можно интегрирование провести в сферической системе координат. Разложив  $\tilde{\omega}_{15} = \exp(i\vec{q}\vec{r}_{15})$  в ряд по функциям Бесселя и представив ВФ гармонического осциллятора в виде произведения радиальной функции на угловую (сферическую функцию)  $\Psi_{nlm}(\vec{r}_i) = R_{nl}(r_i)Y_{lm}(\hat{r}_i)$ , после интегрирования формулы (11) получим:

$$M_{if}^{(1)}(\vec{q}) = \frac{k}{k'} 2\pi f_{pN}(q) B_{2220}(q) \sum_m Y_{2m}(\hat{q}) \quad (12)$$

где

$$B_{2220}(q) = -\frac{1}{\sqrt{2q}} \int_0^\infty R_{22}(r)R_{20}(r)J_{5/2}(qr)r^{3/2}dr. \quad (13)$$

Подставив в (8) второй член ряда многократного рассеяния (9), представив оператор двукратного рассеяния в виде  $\sum_{i<j=1}^{15} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_j = \sum_{i<j=1}^{14} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_j + \sum_{i=1}^{14} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_{15}$ , и учитывая, что из-за ортогональности  $\Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15})$  и  $\Psi_{200}(\vec{r}_{15})$  в матричном элементе останутся только те члены, в которые входит оператор  $\tilde{\omega}_{15}$ , запишем:

$$M_{if}^{(2)}(\vec{q}) = \frac{2\pi k}{k'^2} f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4)|^2 |\Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14})|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}) \sum_{i=1}^{14} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_{15} \prod_{i=1}^{15} d\vec{r}_i. \quad (14)$$

Оператор двукратного рассеяния разделим на два слагаемых, отвечающих соударениям протона с нуклонами на (1s, 1d)- и (1p, 1d)-оболочках  $\sum_{i=1}^{14} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_{15} = \sum_{i=1}^4 \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_{15} + \sum_{i=5}^{14} \tilde{\omega}_i \tilde{\omega}_{15}$ , тогда матричный элемент (14) также будет представлен в виде суммы

$$M_{if}^{(2)}(\vec{q}) = M_{if}^{(2)-sd}(\vec{q}) + M_{if}^{(2)-pd}(\vec{q}), \quad (15)$$

где каждый член (после подстановки второй из формул (10)), примет вид

$$M_{if}^{(2)-sd} = \frac{2\pi k}{k'^2} f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14})|^2 d\vec{r}_5 \dots d\vec{r}_{14} \int |\Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4)|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}) \sum_{i=1}^4 \exp\left(i\frac{\vec{q}}{2}(\vec{r}_i + \vec{r}_{15})\right) \delta(\vec{r}_i - \vec{r}_{15}) d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_4 d\vec{r}_{15}, \quad (16)$$

$$M_{if}^{(2)-pd} = \frac{2\pi k}{k'^2} f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{000}(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_4)|^2 d\vec{r}_1 \dots d\vec{r}_4 \int |\Psi_{11m}(\vec{r}_5, \dots, \vec{r}_{14})|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}_{15}) \Psi_{200}(\vec{r}_{15}) \sum_{i=5}^{14} \exp\left(i\frac{\vec{q}}{2}(\vec{r}_i + \vec{r}_{15})\right) \delta(\vec{r}_i - \vec{r}_{15}) d\vec{r}_5 \dots d\vec{r}_{14} d\vec{r}_{15}. \quad (17)$$

Проинтегрировав по  $d\vec{r}_i$  с помощью  $\delta$ -функции, и учитывая, что с нуклонами  $s$ -оболочки происходит 4 двукратных соударения, а с нуклонами  $p$ -оболочки – 10, запишем

$$M_{if}^{(2)-sd} = \frac{2\pi k}{k'^2} f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) 4 \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{000}(\vec{r})|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}) \Psi_{200}(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}, \quad (18)$$

$$M_{if}^{(2)-pd} = \frac{2\pi k}{k'^2} f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) 10 \sum_{M_J M_J'} \sum_{mm'} \int |\Psi_{11m_1}(\vec{r})|^2 \Psi_{22m_2}^*(\vec{r}) \Psi_{200}(\vec{r}) \exp(i\vec{q}\vec{r}) d\vec{r}. \quad (19)$$

Применив ту же технику, что при вычислении матричного элемента однократного рассеяния, окончательно получим

$$M_{if}^{(2)-sd} = -\frac{k}{k'^2} 2\pi f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) B_{2220}^{00\lambda=2}(q) \sum_m Y_{2m}(\hat{q}), \quad (20)$$

где

$$B_{2220}^{00\lambda=2}(q) = \frac{1}{\sqrt{2q}} \int_0^\infty R_{00}^2 R_{22}(r) R_{20}(r) J_{5/2}(qr) r^{3/2} dr. \quad (21)$$

$$M_{if}^{(2)-pd} = -\frac{k}{k'^2} 2\pi f_{pN}^2 \left(\frac{q}{2}\right) \sum_{\lambda\mu} B_{2220}^{11\lambda}(q) F_{\lambda\mu}(\Phi), \quad (22)$$

где

$$B_{2220}^{11\lambda}(q) = \frac{1}{\sqrt{2q}} \int_0^\infty R_{11}^2 R_{22}(r) R_{20}(r) J_{\lambda+1/2}(qr) r^{3/2} dr, \quad (23)$$

$$F_{\lambda\mu}(\Phi) = (i)^\lambda Y_{\lambda\mu}(\Phi) \int Y_{1m}(\epsilon) Y_{1m}^*(\epsilon) Y_{2m_2}(\epsilon) Y_{\lambda\mu}(\epsilon) d\Omega_r = \frac{3\sqrt{2\lambda+1}}{\sqrt{5}(4\pi)^{3/2}} (i)^\lambda Y_{\lambda\mu}(\Phi) \times \sum_{LM} \langle 1010 | L0 \rangle \langle L0\lambda 0 | 20 \rangle \langle 1m_1 1m_1 | LM \rangle \langle LM\lambda\mu | 2m_2 \rangle. \quad (24)$$

Вычислив матричные элементы, можно рассчитать ДС рассеяния:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2J+1} \left| M_{if}^{(1)}(\vec{q}) - M_{if}^{(2)}\left(\frac{\vec{q}}{2}\right) + \dots \right|^2. \quad (25)$$

На рис.1 представлены ДС при разных энергиях 0.2 (кривая 1), 0.6 (кривая 2) и 1.0 (кривая 3) ГэВ/нуклон. При нулевом угле рассеяния в ДС наблюдается минимум, возникающий из-за ортогональности ВФ начального и конечного состояний. С увеличением энергии дифракционная картина сечения (чередование минимумов и максимумов) становится более ярко выраженной: если для  $E = 0.2$  ГэВ/нуклон имеется два минимума при  $\theta = 0$  и  $34^\circ$ , то для  $E = 0.6$  ГэВ/нуклон второй минимум сдвигается в область меньших углов до  $\theta \sim 18^\circ$  и появляется третий при  $\theta \sim 39^\circ$ . Для  $E = 1.0$  ГэВ/нуклон также наблюдается три минимума, второй при  $\theta \sim 13^\circ$  и третий при  $\theta \sim 28^\circ$ .

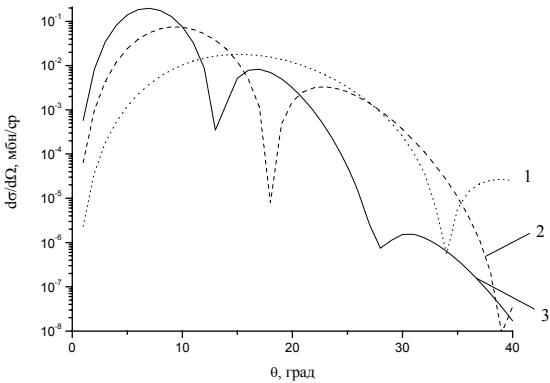


Рис.1. Дифференциальные сечения неупругого  $p^{15}\text{C}$ -рассеяния при разных энергиях. Кривые 1, 2, 3 соответствуют энергиям 0.2, 0.6, 1.0 ГэВ/нуклон

На рис. 2 показаны вклады в ДС разных кратностей рассеяния для энергий 0.6 и 1.0 ГэВ/нуклон. Кривая 1 демонстрирует вклад однократного рассеяния (первого члена формулы (25)), кривая 2 – двукратного (второй член формулы (25)) и кривая 3 – их суммарный вклад. Обратимся к рис. 2а. Здесь кривая 3 – та же, что и 2 на рис. 1. Определяющий вклад в сечение при углах  $\theta < 35^\circ$  дает однократное рассеяние.

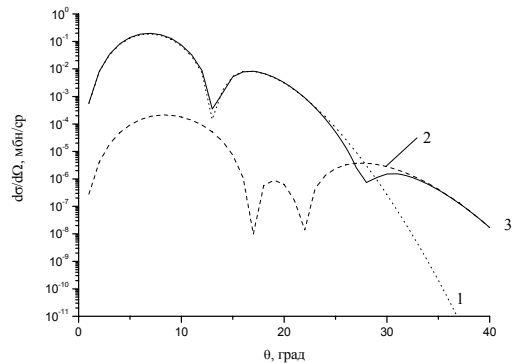
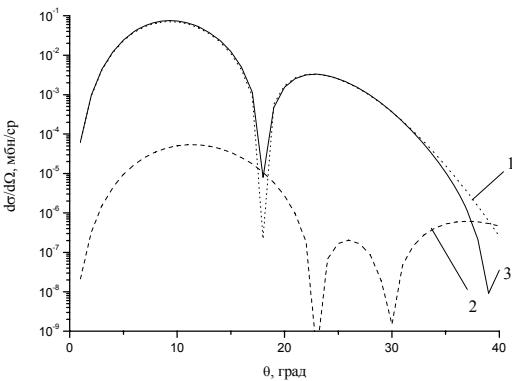


Рис. 2а Вклад в ДС разных кратностей рассеяния для энергии 0.6 ГэВ/нуклон. Кривые 1, 2 и 3 – однократное, двукратное рассеяние и их суммарный вклад.

Рис. 2б. То же, что на рис. 2а для энергии 1.0 ГэВ/нуклон.

Парциальное сечение однократных соударений определяется формулой (12). Минимум при  $\theta \sim 18^\circ$  в парциальном сечении однократных соударений (кривая 1) возникает после интегрирования  $B_{2220}(q)$  (формула (13)) и объясняется структурой самого ядра, т.е. наличием узла в подынтегральной функции Бесселя  $J_{5/2}(qr)$  и полинома в радиальной функции  $R_{20}(r)$ . Остальные члены формулы (12), зависящие от  $q$ , монотонно убывают с увеличением угла  $\theta$ . Как видно из рисунка, минимум в сечении однократного рассеяния частично заполняется вкладом двукратного рассеяния, которое, будучи на несколько порядков меньше однократного, в этой области достигает значений однократного. Таким образом, даже в области передних углов рассеяния необходимо учитывать двукратные соударения в операторе  $\Omega$ . Второй минимум возникает там, где сечения одно- и двукратного рассеяний сравниваются по величине (при  $\theta \sim 39^\circ$ ) из-за того, что ряд многократного рассеяния (2) знакопеременный и при возведении матричных элементов в квадрат в формуле (25), в ДС появляется интерференционный член со знаком минус.

Аналогичная картина наблюдается на рис.2б. Сечение двукратного рассеяния меньше заполняет минимум однократного при  $\theta \sim 13^\circ$ , однако его вклад начинает доминировать уже при  $\theta > 28^\circ$ . Минимум в ДС при  $\theta = 28^\circ$  возникает в результате интерференции первой и второй кратностей рассеяния.

Рассмотрим, какой вклад дают отдельные структурные составляющие ВФ в ДС неупругого рассеяния. В сечение однократного рассеяния ненулевой вклад дает только одна компонента ВФ, соответствующая рассеянию протона на нуклоне  $1d$ -оболочки (см. формулу (12)), это кривая 1 на рис. 2а,б.

В двукратное рассеяние дают вклад два парциальных сечения рассеяния на нуклонах  $(1s, 1d)$ - и  $(1p, 1d)$ -оболочек Дифференциальное сечение двукратного рассеяния получим, возведя в квадрат матричный элемент (15):

$$\frac{d\sigma^{(2)}}{d\Omega} = \frac{1}{2J+1} \left| M_{if}^{(2)-sd}(\vec{q}) + M_{if}^{(2)-pd}(\vec{q}) \right|^2. \quad (26)$$

На рис. 3а показан вклад в ДС от соударений с нуклонами из разных оболочек при энергии 0.6 ГэВ/нуклон. Кривая 1 представляет парциальное сечение двукратного ДС с нуклонами  $1s$  и  $1d$ -оболочек, кривая 2 – парциальное сечение двукратного ДС с нуклонами  $1p$  и  $1d$ -оболочек. Сплошная кривая 3 – суммарная (та же, что кривая 2 на рис.2а).

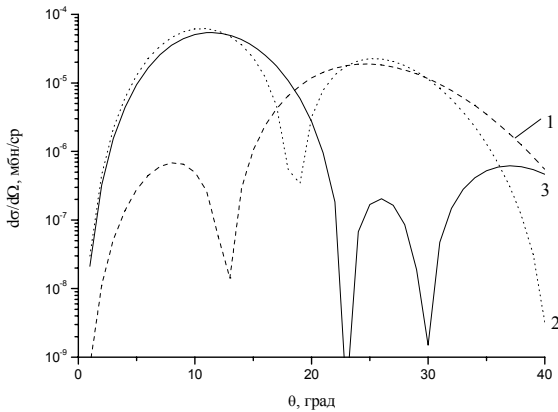


Рис. 3а. Вклад в ДС двукратного неупругого рассеяния от соударений с нуклонами из разных оболочек при энергии 0.6 ГэВ/нуклон. Кривые 1, 2 и 3 – вклады в сечение двукратных соударений с нуклонами  $(1s, 1d)$ ,  $(1p, 1d)$ - оболочек и суммарное.

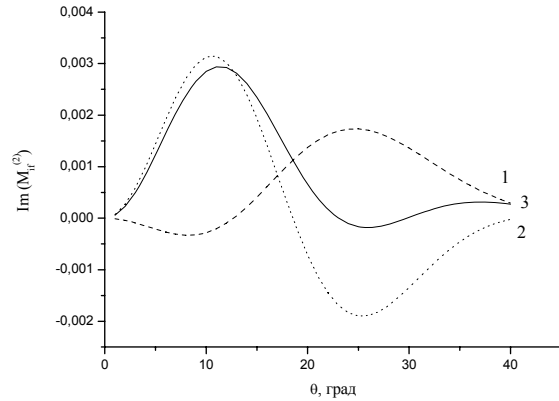


Рис. 3б. Мнимая часть амплитуды двукратного рассеяния при энергии 0.6 ГэВ/нуклон. Кривые 1, 2 и 3 – вклады в амплитуду двукратных соударений с нуклонами  $(1s, 1d)$ ,  $(1p, 1d)$ - оболочек и их сумма.

При малых углах ( $\theta > 15^\circ$ ) ДС целиком определяется соударением с нуклонами  $1p$ - и  $1d$ -оболочек. При  $\theta > 20^\circ$  ДС имеет нерегулярный характер, обусловленный тем, что амплитуды  $\text{Im}(M_{if}^{(2)-sd})$  и  $\text{Im}(M_{if}^{(2)-pd})$  имеют разные знаки (это видно на рис. 3б) и близкие абсолютные значения. При  $\theta > 36^\circ$  ДС на нуклонах  $(1p, 1d)$ -оболочек резко уменьшается и определяющий вклад вносит рассеяние на нуклонах  $(1s, 1d)$ -оболочек. Физически такое поведение ДС объясняется тем, что для того, чтобы рассеяние произошло на нуклоне, находящемся на внутренней  $1s$ -оболочке нужен большой импульс (чем для рассеяния на нуклоне более внешней  $1p$ -оболочки), а чем больше импульс, тем больше угол рассеяния. Известно, что основной вклад в сечение вносит мнимая часть амплитуды рассеяния. Чтобы показать, как формируется общее сечение, на рис. 3б показаны мнимые части амплитуд двукратного рассеяния: кривая 1 –  $\text{Im}(M_{if}^{(2)-sd})$  описывающая рассеяние на нуклонах  $(1s, 1d)$ -оболочек, кривая 2 –  $\text{Im}(M_{if}^{(2)-pd})$ , описывающая рассеяние на нуклонах  $(1p, 1d)$ -оболочек и их сумма (кривая 3). Из рисунка видно, что во всем угловом диапазоне парциальные амплитуды находятся в противофазе, и если при малых углах основной вклад дает рассеяние на нуклонах  $(1p, 1d)$ -оболочек, то при  $\theta > 15^\circ$  начинает оказывать влияние рассеяние на нуклонах  $(1s, 1d)$ -оболочек, и при  $\theta > 36^\circ$  основной вклад дает именно оно.

По результатам проведенных расчетов можно сделать следующие выводы.



С увеличением энергии столкновения (от 0.2 до 1.0 ГэВ/нуклон) в ДС наблюдается более четкая дифракционная картина: число максимумов и минимумов в одинаковом угловом диапазоне увеличивается.

Сечение однократных соударений доминирует при малых углах рассеяния, двукратных – при больших. В областях, где одно- и двукратные ДС сравниваются по величине, возникают минимумы, обусловленные деструктивной интерференцией этих слагаемых при возведении в квадрат матричного элемента.

Из-за ортогональности ВФ начального и конечного состояний вклад в сечение однократного рассеяния дает только рассеяние на нуклоне, находящемся в *d*-оболочке. Максимальный вклад в сечение двукратного рассеяния при малых углах вносит рассеяние на нуклонах (1*p*, 1*d*)-оболочек, а при больших – рассеяние на нуклонах (1*s*, 1*d*)-оболочек.

Минимумы в суммарном сечении неупругого рассеяния появляются как из-за интерференции разных кратностей рассеяния, так и из-за минимума в ДС однократного рассеяния, который возникает из-за структуры самого ядра.

1. Keeley N. and Alamanos N. Single neutron transfer coupling effects on sub-barrier elastic scattering and near-barrier fusion of  $^{15}\text{C}$  // Phys. Rev. C. 2007. Vol. 75. P. 054610.
2. Tiekuan Dong, Zhongzhou Ren and Yanqing Guo. Elastic magnetic form factors of exotic nuclei // Phys. Rev. C. 2007. Vol. 76. P. 054602.
3. Glauber R.G. High - energy collision theory. Lect. Theor. Phys. New York – London: Interscience, 1959.
4. Abu-Ibrahim B., Horiuchi W., Kohama A. and Susuki Y. Reaction cross sections of carbon isotopes incident on a proton // ArXiv: 0710.4193v1 [Nucl-th]
5. Буркова Н.А. и др. Исследование структуры ядра  $^{15}\text{C}$  // Изв. РАН. Сер. физ. 2006. Т. 70, № 2. С. 284-287.
6. Descouvemont P. Microscopic cluster study of the  $^{15,17,19}\text{C}$  isotopes // Nucl. Phys. A. 2000. Vol. 675. P. 559-571.

## О ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ СООТНОШЕНИЯ ФРАНЧИНИ–РАДИКАТТИ К НАРУШАЮЩИМ ВИГНЕРОВСКУЮ $SU(4)$ -СИММЕТРИЮ ФАКТОРАМ

Нурмухамедов А.М., Салихбаев У.С.

*Институт ядерной физики АН Республики Узбекистан, 100214, Улугбек, Ташкент*

*В работе показано, что соотношения Франчини и Радикатти  $R$  обладает достаточной чувствительностью к факторам, нарушающим вигнеровскую спин-изоспиновую  $SU(4)$ -симметрию, если его значения вычисляются с учетом кулоновских поправок и исправлением других неточностей. Значения фактора Франчини и Радикатти  $R$  вычислены в диапазоне массового числа  $5 \leq A \leq 257$ . На основе массовой формулы Вигнера для фактора  $R$  получено теоретическое выражение, которое зависит от изоспина и параметра, значение которого различны в зависимости от вигнеровского типа ядер.*

### 1. ВВЕДЕНИЕ

Изучению проблем возможной реализации спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах, ее нарушения и восстановления в области тяжелых ядер посвящен ряд работ [1–8]. За последние 20–30 лет данных по массам атомных ядер [9] стало существенно больше, чем в 80-х гг. XX столетия. Кроме этого появились теоретические и экспериментальные факты [10, 11], показывающие, что массовая формула Вигнера учитывает спаривание нуклонов. Это свидетельствует о необоснованности аргумента, рассматривающий экспериментальное отсутствие спаривания между протоном и нейтроном в области средних и тяжелых ядер как свидетельство разрушения вигнеровской симметрии. В связи с этим возникла необходимость нового анализа данных по оценке степени нарушения вигнеровской спин-изоспиновой симметрии в атомных ядрах.

Целью настоящей работы является выработка инструмента, использования которого позволит оценить степень реализации вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах.

### 2. ФАКТОР ФРАНЧИНИ–РАДИКАТТИ $R$

Открытие в начале 60-х гг. прошлого века изобарических аналоговых состояний средних и тяжелых ядер подтвердило правомерность изотопической  $SU(2)$ -симметрии. Как оказалось, кулоновское смешивание состояний разного изоспина не чувствительно к постоянной части кулоновского потенциала, что обеспечивает выполнение изотопической  $SU(2)$ -симметрии. Поэтому после открытия аналоговых состояний атомных ядер внимание исследователей было обращено к забытой проблеме вигнеровской симметрии [1, 2]. Начало новым исследованиям положили Франчини и Радикатти [3], которые исследовали проблему экспериментальной реализации массовой формулы Вигнера. На основе данных по массам ядер в области  $A \leq 110$  авторами [3] была определена степень универсальности функции  $b(A)$  массовой формулы Вигнера и экспериментальные значения фактора

$$R_0 = \frac{M(A, T_z) - M(A, T_z - 2)}{M(A, T_z - 1) - M(A, T_z - 2)}, \quad (1)$$

который в случае реализации вигнеровской спин-изоспиновой симметрии зависит только от изоспина  $T_z$ . В выражении (1)  $M(A, T_z)$  – масса ядра с массовым числом  $A$  и изоспином  $T_z$ . В работе [3] было отмечено, что значения  $R_{\text{эксп}}$  приближаются к вигнеровским значениям с ростом  $A$  и  $N - Z$ . Этот факт был интерпретирован как восстановление нарушенной  $SU(4)$ -симметрии при подходе к области  $A \approx 110$ .

Открытие гамов-теллеровского резонанса стимулировало следующий этап исследований проблемы вигнеровской симметрии. В серии работ [4–7] Гапонов и др. провели анализ экспериментальных данных масс ядер на предмет обнаружения восстановления вигнеровской симметрии в области тяжелых ядер. Авторы исправили фактор  $R$  с учетом кулоновских поправок и определили его выражением

$$R_0 = \frac{M(A, T_z) - M(A, T_z - 2) - \Delta E_{\text{Coul}}(Z, Z + 2)}{M(A, T_z - 1) - M(A, T_z - 2) - \Delta E_{\text{Coul}}(Z + 1, Z + 2)}, \quad (2)$$

где  $\Delta E_{\text{Coul}}(Z, Z + 2)$  – разность кулоновской энергии ядер с изоспинами  $T_z$  и  $T_z - 2$ .

Выражение (2) при отсутствии спаривания не зависит от функций  $a(A)$ ,  $b(A)$  массовой формулы Вигнера и определяется только изоспином  $T_z$ . С учетом спаривания авторами [4] получено выражение

$$R = \frac{R_0}{1 + \tau}, \quad \tau = \frac{2\Delta}{\Delta E} = \pm \frac{2\Delta}{b(T_z + 2)}, \quad (3)$$

где  $\Delta = 12A^{-1/2}$  МэВ. В выражении (3) посредством введения параметра  $\tau$  искусственно учитывается спаривание и производится разделение ядер на три типа, соответствующих вигнеровской классификации ядер.

### 3. ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ СООТНОШЕНИЯ $R$ К НАРУШАЮЩИМ ВИГНЕРОВСКУЮ СИММЕТРИЮ ФАКТОРАМ

Чакраборти и др. в работе [8] произвели повторное исследование фактора Франчини и Радикатти  $R$  с целью выяснения информативности этого теста. Они заметили, что авторы работы [3] обнаружили для ядер с массовым числом  $A \leq 110$  удивительное согласие между величиной  $R_{\text{Вигнер}}$ , основанной на соотношении Вигнера, и величиной  $R_{\text{эксп}}$ , вычисленной на основе экспериментальных значений массы основных состояний ядер согласно выражению (1), и решили это проверить. Произведенный Чакраборти и др. анализ привел их к выводу о нечувствительности фактора Франчини и Радикатти к факторам, нарушающим вигнеровскую симметрию.

С выводом Чакраборти и др. можно согласиться в том случае, если определяемый выражением (1) фактор  $R$  как тест, оценивающий степень нарушения вигнеровской симметрии, является информативным. Приведенное в работе [3] хорошее согласие между величинами  $R_{\text{Вигнер}}$  и  $R_{\text{эксп}}$  при существующих очевидных фактах нарушения вигнеровской симметрии свидетельствует о неинформативности теста (1).

На наш взгляд, причиной неинформативности теста  $R$ , вычисляемого согласно выражению (1), являются две неточности.

Во-первых, в формуле (1) не учитываются кулоновские поправки. Предложенное впервые Гапоновым и др. [4–7] выражение (2) учитывает кулоновские поправки в отличие от выражения (1). Учет разности кулоновской энергии  $\Delta E_{\text{Coul}}(Z, Z + 2)$  и  $\Delta E_{\text{Coul}}(Z + 1, Z + 2)$  в выражении (2) Гапоновым и др. является отражением того факта, что кулоновское взаимодействие не нарушает изотопическую симметрию. По этой причине фактор Франчини и Радикатти  $R$  правомерно вычисляется по формуле (2). Игнорирование кулоновских поправок в выражении (1) приводит к нечувствительности теста  $R$ .

Во-вторых, следует отметить, что авторами работ [3–8] при расчете значений фактора  $R$  была допущена ошибка методического характера: в расчетах экспериментальных значений фактора  $R$  были использованы табличные значения массы нейтральных атомов вместо значения массы ядра, которое можно получить, учитывая суммарную массу связанных электронов и энергию их связи [10]. Это обусловлено тем, что массовая формула Вигнера написана для атомного ядра. Во всех таблицах для масс традиционно приводится избыток массы для нейтрального атома. Допущенная методическая ошибка приводит к появлению в числителях выражений (1) и (2) постоянного члена порядка 1 МэВ и к появлению в их знаменателях члена порядка 0.5 МэВ. Это также приводит к снижению чувствительности фактора  $R$  относительно нарушающих вигнеровскую симметрию физических явлений.

Таким образом, 1) при расчете фактора Франчини и Радикатти следует пользоваться выражением (2), предложенным Гапоновым и др. [4–7]; 2) при расчете экспериментальных значений фактора  $R$  следует пользоваться значениями избытка массы ядра, предварительно вычисленными на основе табличных значений избытка массы нейтральных атомов.

### 4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ ЗНАЧЕНИЯ ФАКТОРА $R$

Для вычисления фактора  $R$  воспользуемся выражением (2) и массовой формулой Вигнера [10, 11] без энергии спин-орбитального взаимодействия, которая является нарушающим вигнеровскую симметрию физическим фактором:

$$M(A, Z) = a(A) + b(A)C_2 + E_{\text{Coul}}(A, Z), \quad (4)$$

где  $E_{\text{Coul}}(A, Z) = 703.2Z^2A^{-1/3}(1 - 1.28A^{-2/3})$  [кэВ] [6]. Из выражения (4) получим соответствующие разности вида  $M(A, Z) - E_{\text{Coul}}(A, Z) = a(A) + b(A)(T_z^2 + 4T_z + \delta_{T_z})$  и, подставляя их в (2), получим для фактора  $R$  следующее выражение:

$$R = \frac{(T_z^2 + 4T_z + \delta_{T_z}) - [(T_z - 2)^2 + 4(T_z - 2) + \delta_{T_z - 2}]}{[(T_z - 1)^2 + 4(T_z - 1) + \delta_{T_z - 1}] - [(T_z - 2)^2 + 4(T_z - 2) + \delta_{T_z - 2}]}, \quad (5)$$

где  $\delta_{T_z} = 3.0, 1.5$  и  $0.0$ , если  $N, Z$  – нечетные,  $A$  – нечетное, и  $N, Z$  – четные соответственно (подробности см. в [10, 11]). После упрощения выражения (5) получим простую формулу для фактора  $R$ :

$$R_{\text{теор}} = \frac{4(T_z + 1)}{2T_z + 1 + \eta}. \quad (6)$$

В последнем выражении  $\eta = +3$ , если ядро с изоспином  $T_z$  является четно-четным;  $\eta = 0$ , если ядро имеет нечетное массовое число, и  $\eta = -3$ , если ядро является нечетно-нечетным. Как видно из (6), при выполнении вигнеровской симметрии фактор  $R$  зависит только от изоспина  $T_z$  и  $\eta$ . Величина  $\eta$  приводит к разделению кривой  $R_{\text{теор}}$  на три семейства в соответствии с вигнеровским типом ядер, и ее происхождение связано со свободным членом оператора Казимира, учитывающим спаривательный эффект.

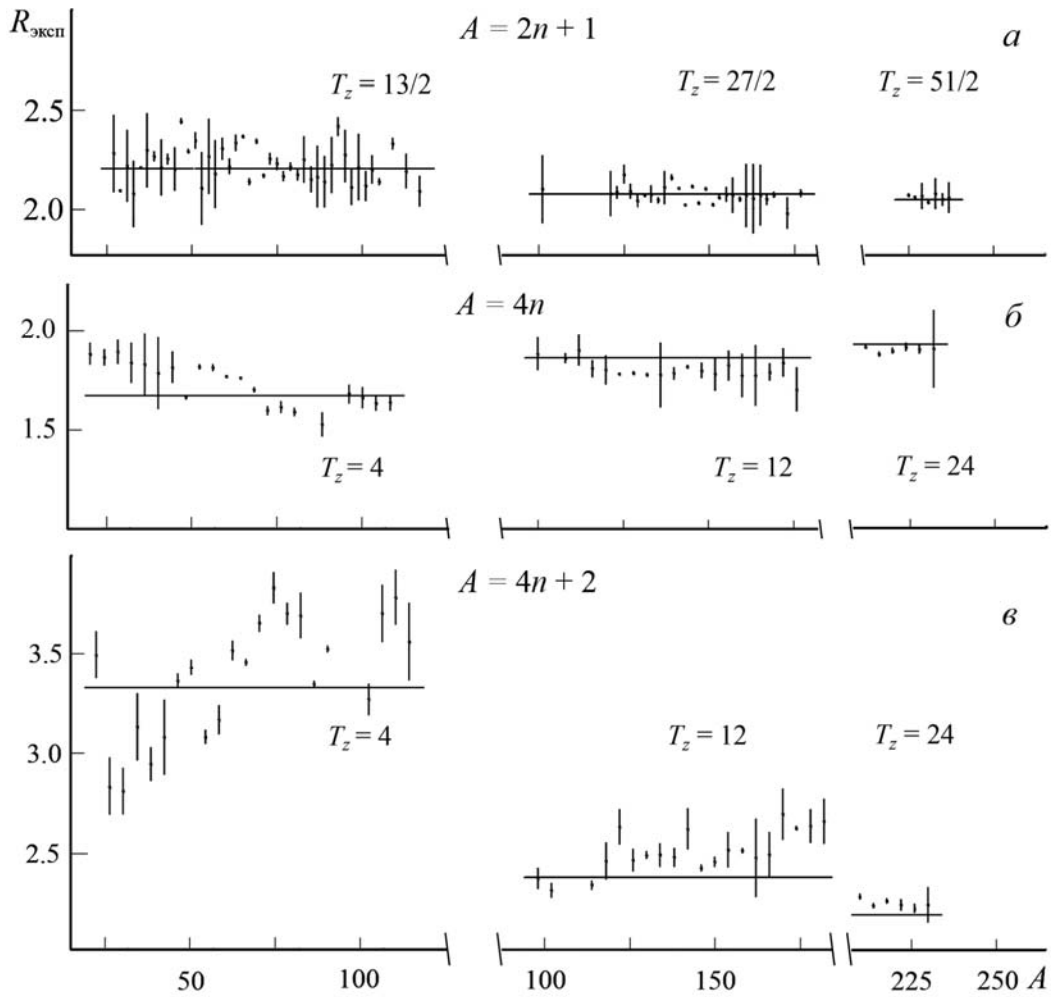


Рис. 1. Зависимость экспериментальных значений фактора Франчини и Радикатти  $R_{\text{эксп}}$  от массового числа  $A$  для ядер с изоспинами: а –  $T_z = 13/2, 27/2$  и  $51/2$  ( $A = 2n + 1$  – ядра с нечетными массовыми числами), б –  $T_z = 4, 12$  и  $24$  ( $A = 4n$  – четно-четные ядра), в –  $T_z = 4, 12$  и  $24$  ( $A = 4n + 2$  – нечетно-нечетные ядра).

Вычисление экспериментальных значений  $R_{\text{ЭКСП}}$  произведено нами на основе выражения (2). При этом для каждого случая была вычислена масса ядра согласно следующему выражению [9]:

$$M(Z, N)_{\text{ядро}} = M(Z, N)_{\text{атом}} - Zm_e c^2 + B(Z), \quad (7)$$

где  $M(Z, N)_{\text{ядро}}$  – масса ядра;  $M(Z, N)_{\text{атом}}$  – масса нейтрального атома;  $Zm_e c^2$  и  $B(Z)$  – суммарная масса и энергия связи связанных в атоме электронов соответственно.

Погрешности экспериментальных значений величины  $R_{\text{ЭКСП}}$  вычислялись как погрешность косвенных измерений. Средние значения фактора  $\bar{R}_{\text{ЭКСП}}$  вычислялись как средневзвешенное значение фактора  $R$  для ядер с изоспином  $T_z$ , т.е. как

$$\bar{R}_{\text{ЭКСП}} = \frac{\sum_{i=1}^n w_i R_i}{\sum_{i=1}^n w_i},$$

где  $w_i = 1/\Delta R_i^2$  – вес измерения,  $n$  – объем выборки. Погрешность  $\Delta \bar{R}_{\text{ЭКСП}}$  рассчитана как среднеквадратичная.

Расчет  $R_{\text{ЭКСП}}$  выполнен для всех возможных случаев в диапазоне изменения массового числа  $5 \leq A \leq 257$ . На рис. 1а, 1б и 1в приводятся зависимости экспериментальных значений фактора Франчини и Радикатти  $R_{\text{ЭКСП}}$  от массового числа  $A$  для трех групп ядер с изоспинами  $T_z = 13/2, 27/2$  и  $51/2$  ( $A = 2n + 1$  – ядра с нечетными массовыми числами),  $T_z = 4, 12$  и  $24$  ( $A = 4n$  – четно-четные ядра) и  $T_z = 4, 12$  и  $24$  ( $A = 4n + 2$  – нечетно-нечетные ядра) соответственно. Прямые линии на рис. 1 построены согласно выражению (6). Как видно из рис. 1, расчетные значения фактора Франчини и Радикатти подвержены вариациям, т.е. чувствительны к влиянию нарушающего спин-орбитального взаимодействия. Этот результат качественно и количественно отличается от результатов, изложенных в работах [3, 8].

Таким образом, фактор Франчини и Радикатти с исправлениями указанными выше неточностей может быть использован, как тест для инструментальной проверки реализации вигнеровской спин-изоспиновой  $SU(4)$ -симметрии в атомных ядрах.

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

13. E. Wigner, Phys. Rev. **51**, 947 (1937).
14. E. Wigner and E. Feenberg, Rep. Prog. Phys. **8**, 274 (1941).
15. P. Franzini and L. A. Radicati, Phys. Lett. **6**, 322 (1963).
16. Ю. В. Гапонов, Ю. И. Григорьян, Ю. С. Лютостанский, ЯФ **31**, 65 (1980).
17. Ю. В. Гапонов, Н. Б. Шульгина, Д. М. Владимиров, Письма в ЖЭТФ **34**, 300 (1981).
18. Yu. V. Gaponov, N. B. Shulgina, and D. M. Vladimirov, Nucl. Phys. A **391**, 93 (1982).
19. Ю. В. Гапонов, Физика атомного ядра, Материалы XVIII зимней школы ЛИЯФ (ЛИЯФ, Ленинград, 1983), с. 43.
20. M. Chakraborty, V. K. Brahma, K. Kota, and J. C. Parikh, Phys. Rev. Lett. **45**, 1073 (1980).
21. G. Audi, A. H. Wapstra, and C. Thibault, Nucl. Phys. A **729**, 337 (2003).
22. А. М. Нурмухамедов, ЯФ **72**, 434 (2009) [Phys. Atom. Nucl. **72**, 401 (2009)].
23. А. М. Нурмухамедов, ЯФ **72**, 1489 (2009) [Phys. Atom. Nucl. **72**, 1435 (2009)].

### ОСОБЕННОСТИ ФРАГМЕНТАЦИИ ЯДЕР Au (10.7 А·ГэВ) и Pb (158 А·ГэВ) ВО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ С ЯДРАМИ ЭМУЛЬСИИ

А.Х.Аргынова, А.Ш.Гайтинов, А.А.Локтионов, В.И.Скоробогатова, П.Б.Харчевников  
Физико-технический Институт, Алматы, Казахстан

В работе исследуется фрагментация тяжелого ядра-снаряда в столкновении с ядром-мишенью с целью выяснения особенностей механизма этого процесса. Для решения поставленной задачи используются экспериментальные данные, полученные международным сотрудничеством ЕМУ01 с участием авторов: стопки из слоев (600 мк) фотоэмульсии облучались ионами  ${}_{79}\text{Au}^{197}$  с энергией 10,7 А·ГэВ (Брукхейвен, США) и  ${}_{82}\text{Pb}^{208}$  - 158 А·ГэВ (ЦЕРН, Женева).

Используемый фотоэмульсионный метод позволяет:

- изучать процессы взаимодействия в условиях  $4\pi$  – геометрии;
- фиксировать центр взаимодействия и пробеги частиц с микронной точностью;
- высокое пространственное разрешение, позволяющее определять углы вылета частиц и фрагментов ядра-снаряда до тысячных долей радиана в событиях с многими сотнями частиц;

- на основе измерения плотности  $\delta$ -электронов и числа разрывов на следах фрагментов определять их заряд.

В ряде теоретических подходов (моделей) предполагается, что во взаимодействиях ядер механизм процесса фрагментации остаточного ядра может реализовываться в зависимости полученной им энергии двух видов: при малых передачах энергии – испарительный (последовательное испускание одно- и двухзарядных фрагментов) и взрывной (одновременное образование фрагментов с любыми зарядами).

События, в которых реализуется механизм фрагментации испарительного типа (согласно определению) могут быть обнаружены среди событий с одним многозарядным фрагментом ( $Z \geq 3$ ), представляющим как конечный объект фрагментации.

Учитывая, что долю передаваемой энергии для возбуждения остаточного ядра определяется числом провзаимодействовавших протонов ( $n_{g1}$ ) ядра-снаряда, в событиях с одним многозарядным фрагментом, были построены графики зависимости от этой величины: доли событий ( $\Delta N_c / N_c = f(n_{g1})$ ) и доли образовавшихся фрагментов в одном событии ( $\Delta N_f / N_c = f(n_{g1})$ ) - рисунки 1÷4.

Значение  $n_{g1}$  определялось из соотношения:  $n_{g1} = Z_o - \sum Z_f$ , где  $Z_o$  - заряд первичного ядра и  $Z_f$  - заряды образовавшихся фрагментов.

На графиках (рис. 1 и 3) события распределялись на две группы (два максимума) с границей раздела: для  $Au - n_{g1} \approx 20$  и  $Pb - n_{g1} \approx 30$ . События с малыми значениями  $n_{g1}$  ( $<20$ ;  $<30$ ) были отнесены испарительному механизму фрагментации, а с большими ( $\geq 20$ ;  $\geq 30$ ) – к взрывному.

Из рисунков 2 и 4, где представлены зависимости доли образовавшихся фрагментов в одном событии (одна из основных характеристик) еще более четкое разделение на два разных механизма процесса фрагментации.

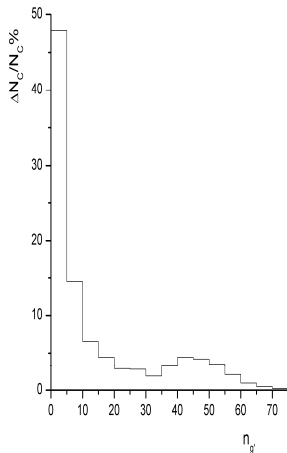


Рис.1. Распределение доли событий от числа провзаимодействовавших протонов во взаимодействиях протонов ядер золота с энергией 10.6 А·ГэВ ядрами в фотоэмульсии.

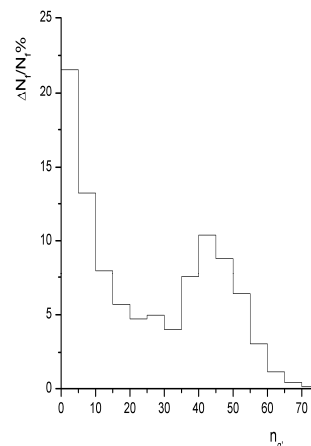


Рис.2. Распределение доли фрагментов от числа провзаимодействовавших протонов во взаимодействиях протонов ядер золота с энергией 10.6 А·ГэВ ядрами в фотоэмульсии.

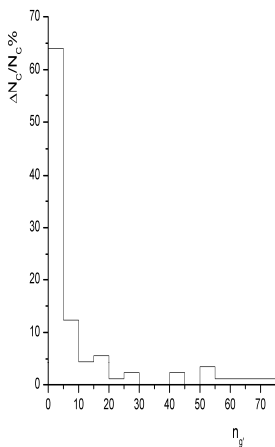


Рис.3. Распределение доли событий от числа провзаимодействовавших протонов во взаимодействиях протонов ядер свинца с энергией 158 А·ГэВ ядрами в фотоэмульсии.

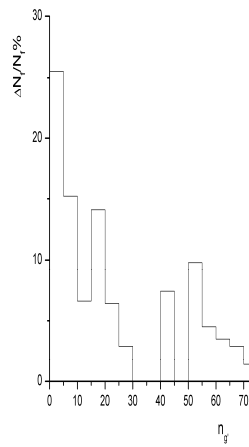


Рис.4. Распределение доли фрагментов от числа провзаимодействовавших протонов во взаимодействиях протонов ядер свинца с энергией 158 А·ГэВ ядрами в фотоэмульсии.

События с двумя и более многозарядными фрагментами ( $Z_f \geq 3$ ) и, тем более только с зарядами  $Z=1$  и  $Z=2$  (полное разрушение ядра), следует, по-видимому, отнести к событиям, в которых реализуется механизм фрагментации взрывного типа.

Следует отметить следующие особенности: для ядра  $Pb$  доля событий с взрывным видом фрагментации (39% - от общего числа событий) и число образовавшихся фрагментов на одно взаимодействие ( $4,3 \pm 0,5$ ) оказались заметно меньше, чем для ядра  $Au$  (72%;  $10,3 \pm 0,5$  соответственно), что, по-видимому, связано с особой устойчивостью ядра  ${}_{82}Pb^{208}$  как ядра с дважды магическими числами (82 протона, 126 нейтронов).

Следует также отметить, что среднее число провзаимодействовавших протонов ядра – снаряда  $\langle n_g \rangle$  и ядра – мишени  $\langle n_g \rangle$  в эксперименте с  $Pb$  оказались заметно меньше ( $\langle n_g \rangle = 14.7 \pm 1.2$ ;  $\langle n_g \rangle = 4.0 \pm 0.2$ ), чем с  $Au$  ( $\langle n_g \rangle = 21.4 \pm 0.6$ ;  $\langle n_g \rangle = 5.8 \pm 0.2$ ), что, по-видимому, связано с существенно большей первичной энергией ядра  $Pb$  по сравнению с ядром  $Au$  ( $\approx 15$  раз). Если теперь учесть, что указанные средние величины определяют величину передаваемой энергии на фрагментацию остаточных ядер, то это является второй причиной почему указанная выше средняя множественность фрагментов для ядер  $Pb$  меньше, чем для ядер  $Au$ .

В заключение отметим, что удалось найти критерии экспериментального выделения событий, в которых реализуется два механизма процесса фрагментации.

Сопоставление характеристик фрагментации для двух близких по массе и заряду тяжелых ядер ( ${}_{79}Au^{197}$ ,  ${}_{82}Pb^{208}$ ) позволило установить существенное влияние на механизм фрагментации устойчивость ядра, связанное с его магическими числами  ${}_{82}Pb^{208}$ , а также с величиной его первичной энергией.

УДК 539.17.01

### ОТНОШЕНИЕ АСИМПТОТИЧЕСКИХ НОРМИРОВОЧНЫХ КОЭФФИЦИЕНТОВ СВЯЗАННЫХ СОСТОЯНИЙ НЕЙТРОНА И ПРОТОНА В СИММЕТРИЧНОМ ЯДРЕ ${}^{10}B$ ИЗ РЕАКЦИЙ ${}^{10}B(p,d){}^9B$ И ${}^9Be(d,n){}^{10}B$

Артемов С.В., Ни Г.К., Каюмов М.А., Запаров Э.А.  
Институт ядерной физики Академии наук РУз, 100214 Ташкент, Узбекистан

#### Введение.

Ранее нами были исследованы реакции  ${}^{10}B(d,t){}^9B$  и  ${}^{10}B(d,{}^3He){}^9Be$  [1], расчетные сечения которых, как известно, определяются асимптотической частью амплитуды. Это позволяет находить величины асимптотического нормировочного коэффициента (АНК) радиальных интегралов перекрытия с погрешностью, в основном обусловленной лишь неопределенностью в выборе оптических потенциалов для описания искаженных волн рассеяния во входном и выходном каналах реакции [2,3]. Реакции, протекающие на периферии ядра, позволяют находить АНК практически независимо от неопределенности используемых геометрических параметров Вудса-Саксоновского потенциала связанного состояния передаваемой частицы. Анализ проводится в рамках комбинированного метода (КМ) [2,3], позволяющего тестировать расчетное сечение на периферийность реакции и доминирование полюсного механизма передачи нуклона. Получение близких значений АНК для реакций при разных энергиях налетающей частицы служит основанием полагать, что механизм передачи нуклона наипростейший, т.е. соответствующий полюсной диаграмме. Метод КМ основывается на подходе [4,5], где при анализе прямых реакций в рамках МИВ используются АНК  $C^2$  и асимптотический коэффициент нормированной на единицу оболочечно-модельной волновой функции связанного состояния передаваемого нуклона (АК)  $b$ , который существенно зависит от геометрических параметров потенциала связанного состояния, используемого в расчетах. АНК  $C^2$ , АК  $b$  и спектроскопический фактор (СФ)  $S$  связаны соотношением [4,5]

$$C^2 = Sb^2$$

В работе [1] при анализе зеркальных реакций  ${}^{10}B(d,t){}^9B$  и  ${}^{10}B(d,{}^3He){}^9Be$  было использовано дополнительное условие, налагаемое на используемые потенциалы, определяемое изотопической инвариантностью ядерных сил. В анализе использовался один общий оптический потенциал для дейтронного канала в обеих реакциях, также использовался единый набор параметров оптического потенциала при описании взаимодействия изобар  $t+{}^9B$  и  ${}^3He+{}^9Be$  в выходном канале. Требование хорошего описания углового распределения зеркальных реакций в главном пике оказалось довольно жестким критерием отбора для оптических потенциалов. Главным результатом [1] явилось то, что при равенстве значения спектроскопических факторов симметричных связанных состояний отношение эмпирических значений АНК для нейтронной ( ${}^9B+n$ ) и протонной ( ${}^9Be+p$ ) конфигураций ядра  ${}^{10}B$  равно отношению квадратов соответствующих АК  $b_n^2/b_p^2$ . Последнее вычисляется при условии эквивалентности нейтронного и протонного потенциалов (ЭПН-условие [6]) для симметричных связей и остается постоянным с точностью до 1% [7].

В отличие от реакций  ${}^{10}B(d,t){}^9B$  и  ${}^{10}B(d,{}^3He){}^9Be$ , расчетные сечения реакций с участием наипростейшего связанного состояния нуклонов, дейтрона,  ${}^{10}B(p,d){}^9B$  и  ${}^9Be(d,n){}^{10}B$ , как правило, содержат заметный вклад внутренней части ядра. Это привносит сильную зависимость извлекаемого значения АНК от используемых геометрических

параметров потенциала связанного состояния, а также сильно увеличивает погрешность в выходных величинах из-за неопределенности в выборе оптических потенциалов. Разброс может достигать 50% и выше [2]. В настоящей работе для анализа реакций  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  и  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$ , так же как и в анализе реакций с участием ядер  $^3\text{H}$  и  $^3\text{He}$ , используется метод КМ, и критерием отбора оптических потенциалов (используемых одновременно для обеих реакций) служит хорошее описание углового распределения продуктов зеркальных реакций в области передних углов вылета. Проводится сравнительный анализ величин СФ и АНК для симметричных связанных состояний  $^{10}\text{B} - ^9\text{Be}+p$  и  $^{10}\text{B} - ^9\text{B}+n$ , полученных из анализа реакций  $^{10}\text{B}(d,t)^9\text{B}$  и  $^{10}\text{B}(d,^3\text{He})^9\text{Be}$  и реакций  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  и  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$  при геометрических параметрах потенциала связанного состояния, найденных ЭПН методом из независимого анализа энергий связи нейтрона и протона [8].

**Анализ реакции  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  и  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$**

Нами проанализированы экспериментальные сечения реакций  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$  при  $E_d=15.25$  МэВ [9] (рис.1) и  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  при  $E_p=18.6$  МэВ [10] (рис.2). На рисунках. показаны расчетные угловые распределения продуктов реакций в сравнении с экспериментальными. Расчеты также выполнены с введением отличного от нуля радиуса обрезания  $r_{\text{cut}}$  интеграла перекрытия радиальных волновых функций на нижнем пределе, т.е. искусственного устранения вклада внутренней области ядра.

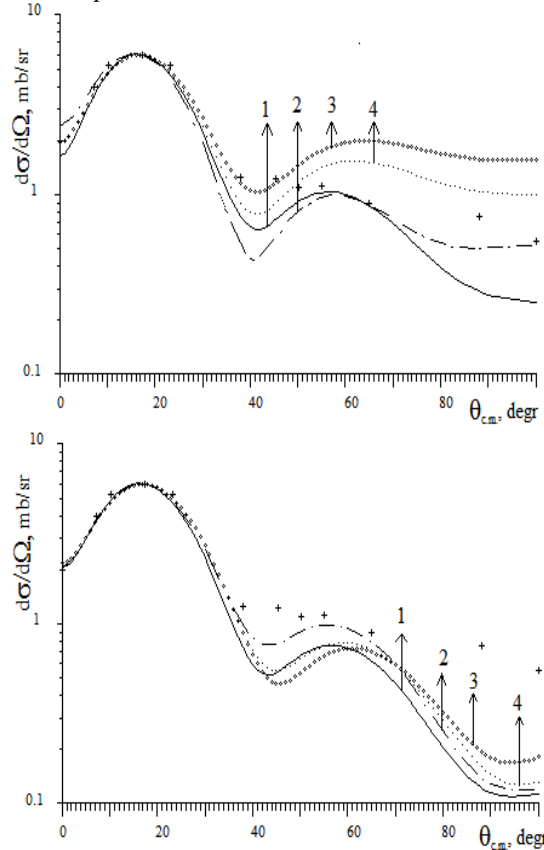


Рис. 1. Дифференциальные сечения реакций  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$  при  $E_d=15.25$  МэВ. Линии - расчетные сечения с использованием оптических потенциалов, приведенных в Таблице 1. Угловые распределения рассчитаны при двух значениях радиуса обрезания  $r_{\text{cut}}=0$  фм (вверху) и  $r_{\text{cut}}=4$  фм (внизу).

Четыре набора оптических потенциалов (см. Таблица 1.) были отобраны из большого количества имеющихся в литературе данных исходя из требования хорошего описания угловых распределений одновременно обеих зеркальных реакций.

Таблица 1. Оптические потенциалы, использованные в КМ-расчетах.

	Входной канал $^9\text{Be}+d$				Выходной канал $^{10}\text{B}+p$ $^{10}\text{B}+n$
	$^9\text{Be}d3[11]$	$^9\text{Be}d4[11]$	$^9\text{Be}d9[12]$	$^9\text{Be}d10[12]$	$^{10}\text{B}p2[11]$
Номер набора параметров	1	2	3	4	1 ÷ 4
$E_d$ , МэВ	15	15.8	15	15	17
$V$ , МэВ	-83.1	-134.9	-113.0	-113.0	-50.0
$r_v$ , ФМ	1.005	0.817	0.82	0.87	1.13
$a_v$ , ФМ	0.992	1.045	0.96	0.96	0.70



$W, \text{ МэВ}$	-33.3	11.1	10.0	13.5	-13.3
$r_{w}, \text{ ФМ}$	1.106	2.078	0.90	0.82	1.13
$a_{w}, \text{ ФМ}$	0.827	0.522	0.90	0.95	0.70
$V_{so}, \text{ МэВ}$	-	-10.44	-4.0	-5.5	-
$r_{so}, \text{ ФМ}$	-	0.817	1.00	1.0	-
$a_{so}, \text{ ФМ}$	-	1.045	0.70	0.82	-
$r_c, \text{ ФМ}$	1.25	1.3	1.3	1.3	1.2

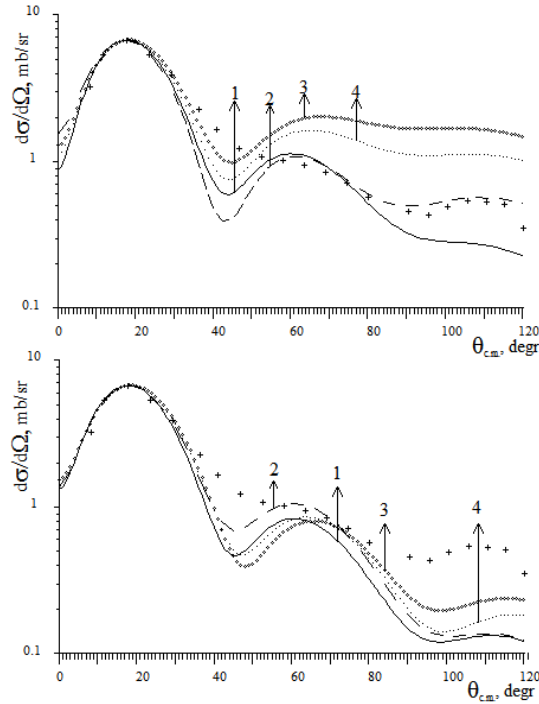


Рис. 2. Дифференциальные сечения реакций  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  при  $E_p=18.6$  МэВ. Линии - расчетные сечения с использованием оптических потенциалов, приведенных в Таблице 1. Угловые распределения рассчитаны при двух значениях радиуса обрезания  $r_{\text{cut}}=0$  фм (вверху) и  $r_{\text{cut}}=4$  фм (внизу).

В расчетах использовано значение АНК легкой вершины  $C_{d \rightarrow n+p}^2 = C_d^2 = 0.77 \text{ фм}^{-1}$  при значении квадрата модуля ядерной вершинной константы  $|G_{d \rightarrow n+p}|^2 = 0.43 \text{ фм}$  [4]. Значение СФ легкой вершины принято равным единице при геометрических параметрах потенциала связанного состояния нуклона  $r_0=1.0$  фм и  $a=0.509$  фм для протонной и нейтронной связи в вершине  $d \rightarrow n+p$ . Расчеты проводились при геометрических параметрах потенциала связанного состояния, найденные методом ЭПН из анализа одночастичных энергий связи нейтрона и протона в ядре  $^{10}\text{B}$  с использованием радиуса положения последнего протона в ядре, оцененного в рамках альфа-кластерной модели ядра:  $r_c=1.847$  фм,  $r_0=1.22$  фм,  $a=0.65$  фм  $b_n=2.894 \text{ фм}^{-1/2}$  и  $b_p=3.212 \text{ фм}^{-1/2}$  [8]. Из рисунков 2 и 3 видно, что расчетные угловые распределения хорошо описывают экспериментальное угловое распределение в области главного пика рассеяния.

На рис. 3 представлены графики значений  $C_n^2 = C_{^{10}\text{B} \rightarrow ^9\text{B}+n}^2$  и  $C_p^2 = C_{^{10}\text{B} \rightarrow ^9\text{Be}+p}^2$  для разных значений геометрических параметров Вудса-Саксоновского потенциала связанного состояния, удовлетворяющих требованию эквивалентных ядерных потенциалов для нейтронной и протонной связи в симметричном ядре  $^{10}\text{B}$ .

Из рисунка видно, что величины  $C_n^2$  и  $C_p^2$  практически не зависят от значений  $b$ , т.е. от геометрических параметров потенциала связанного состояния, используемых в расчетах. Это характерно для реакций, в которых расчетное сечение определяется преимущественно асимптотической частью амплитуды. Полученные величины имеют разброс вокруг средних значений, обусловленный использованием различной оптики. Разброс полученных величин неожиданно мал для такого рода реакций. Соответствующие данные приведены в Таблице 2. В таблицу также включено значение  $C_p^2$ , полученное из анализа реакций с участием тяжелых ионов  $^9\text{Be}(^{10}\text{B}, ^{10}\text{B})^9\text{Be}$  и  $^9\text{Be}(^{10}\text{B}, ^9\text{Be})^{10}\text{B}$  при энергии налетающего ядра  $^{10}\text{B}$  100 МэВ [13].

Таблица 2

Реакции	$C_n^2/C_p^2$	$C_p^2$	$S_p$	$C_n^2$	$S_n$
$^{10}\text{B}(d,t)^9\text{B}$ $^{10}\text{B}(d,^3\text{He})^9\text{Be}$ [1]	$0.70 \div 0.76$	$3.01 \div 4.04$	$0.29 \div 0.39$	$2.12 \div 3.07$	$0.25 \div 0.36$

${}^9\text{Be}({}^{10}\text{B}, {}^{10}\text{B}){}^9\text{Be}$ ${}^9\text{Be}({}^{10}\text{B}, {}^9\text{Be}){}^{10}\text{B}$ [13]		4.91÷5.35	0.47÷0.52	$C_n^2 = C_p^2 * b_n^2 / b_p^2$ 3.98÷4.34	0.48÷0.52-
$r_{\text{cut}}=0$ фм, ${}^{10}\text{B}(p,d){}^9\text{B}$ ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$	0.90÷0.98	5.06÷7.13	0.49÷0.69	4.56÷7.01	0.54÷0.84
$r_{\text{cut}}=4$ фм, ${}^{10}\text{B}(p,d){}^9\text{B}$ ${}^9\text{Be}(d,n){}^{10}\text{B}$	0.94÷0.99	4.10÷6.22	0.44÷0.60	3.89÷6.17	0.46÷0.74

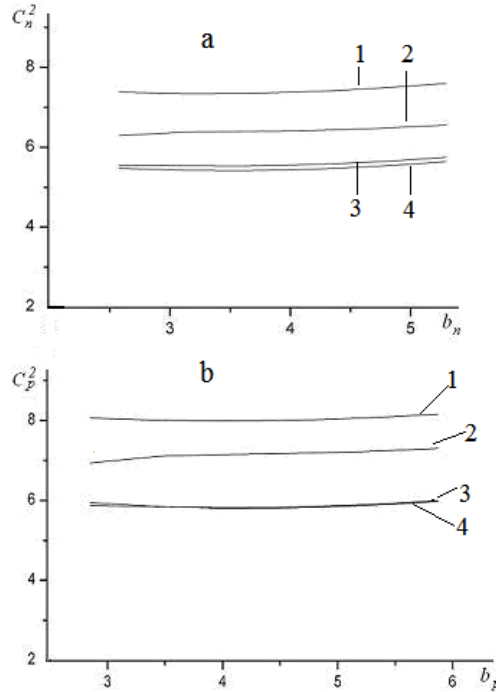


Рис. 3. Величины  $C^2$  для нейтронной (а) и протонной (б) связи для разных геометрических параметров потенциала связанного состояния, отвечающих требованию ЭПН. Расчет проведен для наборов параметров 1-4 представленных в таблице 1.

Из таблицы видно, что наблюдается несогласие между величинами АНК, полученными из анализа разных реакций. Однако, несмотря на противоречивость полученных значений АНК и значительный разброс их величин, отношение нейтронного и протонного АНК для симметричных связанных состояний нейтрона и протона в ядре  ${}^{10}\text{B}$  согласуется с теоретическим значением  $b_n^2/b_p^2=0.811/8/$ . Разброс в значении отношения эмпирических величин АНК нейтрона и протона  $C_n^2/C_p^2$  мал в сравнении с разбросом самих абсолютных значений АНК. Малый разброс в величинах отношения эмпирических  $C_n^2/C_p^2$  и равенство его теоретическому значению  $b_n^2/b_p^2$  определяется тем, что эмпирические значения спектроскопических факторов нейтронного и протонного связанного состояния, полученные из анализа пары зеркальных реакций, близки по величине, что является интересным результатом и определенно является проявлением изотопической инвариантности ядерных сил.

Реакции с участием дейтрона в легкой вершине диаграммы передачи нуклона имеют одну характерную особенность. Зависимость расчетного сечения в главном стриппинговом пике от радиуса обрезания  $r_{\text{cut}}$  (см. Рис. 4) имеет вид, нетипичный для чисто периферийных реакций, где сечение остается постоянным при росте  $r_{\text{cut}}$  до некоторого значения, которое можно интерпретировать как эффективный радиус взаимодействия  $R_{\text{eff}}$ . Дальнейший рост величины  $r_{\text{cut}}$  приводит к плавному уменьшению сечения, как это наблюдается в случае реакций  ${}^{10}\text{B}(d,t){}^9\text{B}$  и  ${}^{10}\text{B}(d,{}^3\text{He}){}^9\text{Be}$ , см. рис. 2 (б) в [1].

Надо сказать, что прямые реакции с участием дейтронов всегда предполагались наипростейшими и протекающими на периферии ядра. Возможно, необходимо введение эффективного радиуса взаимодействия, другими словами, радиуса обрезания для адекватного расчета их сечений в рамках МИВ. Особенностью расчетного радиуса реакций с участием связанного состояния дейтрона является то, что при радиусе обрезания  $r_{\text{cut}}=4$  фм, расчетное сечение имеет большее значение, чем без обрезания (см. Рис. 4). Кроме того, введение обрезания  $r_{\text{cut}}=4$  фм приводит к улучшению описания углового распределения в области главного максимума углового распределения, (см. Рис. 1 и 2). В Таблице 2 в последней строке приведены величины АНК и спектроскопического фактора, полученные с введением в анализ  $r_{\text{cut}}=4$  фм. Из таблицы видно, что разброс в значениях АНК, вызванный использованием различных оптических потенциалов, с введением обрезания уменьшается, и величины АНК согласуются с теми, что получены из анализа реакций с тяжелыми ионами. Использование  $r_{\text{cut}}=4$  фм для реакций типа  ${}^{10}\text{B}(d,t){}^9\text{B}$  и  ${}^{10}\text{B}(d,{}^3\text{He}){}^9\text{Be}$  не меняет значение расчетного сечения в главном пике (см Рис. 2 из [1]), поэтому выходные величины анализа этих реакций не меняются. При введении радиуса обрезания  $r_{\text{cut}}=4$  фм отношение  $C_n^2/C_p^2$  становится ближе к расчетному

теоретическому, и абсолютное значение АНК нейтрона становится ближе к значению, полученному из анализа реакций с тяжелыми ионами.

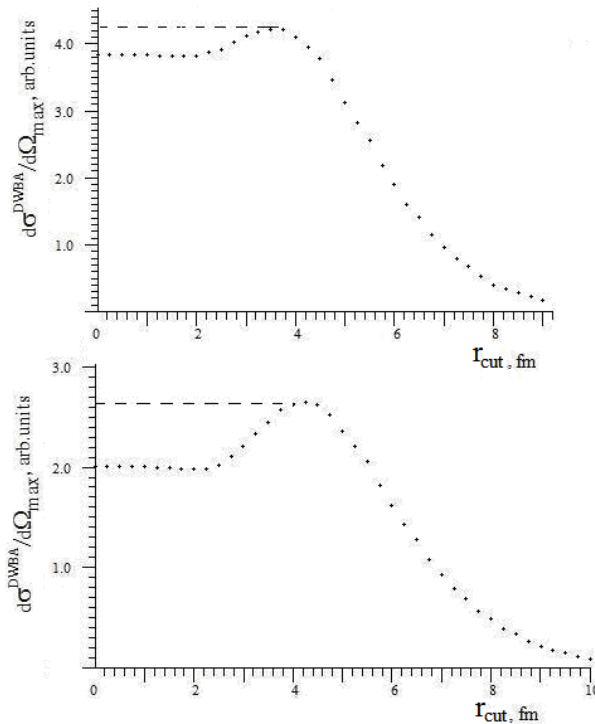


Рис. 4. Зависимость сечения реакции в главном пике углового распределения от радиуса обрезания  $r_{cut}$ . Пунктирной линией показана зависимость сечения в главном пике углового распределения в случае вклада в сечение реакции лишь асимптотической части амплитуды.

### Заключение

Анализ зеркальных реакций  $^{10}\text{B}(p,d)^9\text{B}$  при  $E_p=18.6$  МэВ [8] и  $^9\text{Be}(d,n)^{10}\text{B}$  при  $E_d=15.25$  МэВ [9] в рамках метода КМ с учетом изотопической инвариантности ядерных сил показал, что в расчетное сечение в действительности дает основной вклад асимптотическая часть амплитуды, что позволило получить величины АНК симметричных связанных состояний с необычно малым разбросом значений в зависимости от выбора оптических потенциалов. Особенностью изучаемых реакций является то, что сечение в главном стриппинговом пике от радиуса обрезания имеет максимум при  $r_{cut}=4$  фм, что не характерно для периферийных реакций. Полученные АНК при  $r_{cut}=0$  фм заметно отличаются от полученных из анализа реакций  $^{10}\text{B}(d,t)^9\text{B}$  и  $^{10}\text{B}(d,^3\text{He})^9\text{Be}$  [1] и из анализа реакций с тяжелыми ионами [13]. При анализе реакций  $(p,d)$  и  $(d,n)$  предлагается введение эффективного радиуса взаимодействия, который в данном случае равен 4 фм. При введении эффективного радиуса улучшается описание углового распределения, уменьшается разброс полученных величин АНК, улучшается согласие получаемых величин с величинами из анализа других реакций, а отношение эмпирических  $C_n^2/C_p^2$  становится равным расчетному значению.

Необходимо также отметить, что отличие полученных разными путями абсолютных значений АНК может также указывает на необходимость корректировки величины АНК  $C_d^2$  для дейтронной вершины, используемой в расчетах.

### Литература

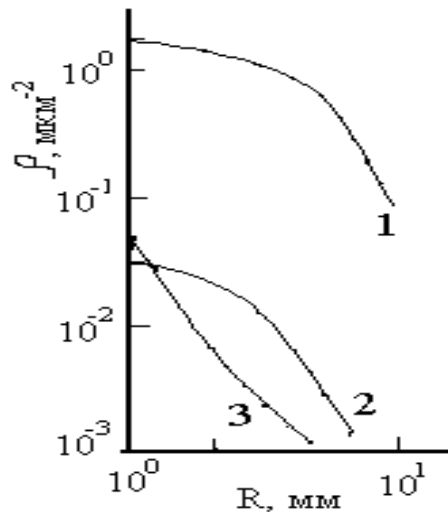
1. S.V.Artemov et al, // Bull. Russ. Acad. of Sc.: Physics, 2011, Vol. 75, No. 7, P. 920
2. I.R. Gulamov, A.M. Mukhamedzhanov, G.K. Nie // Phys. At. Nucl. 1995. V. 58. P. 1689
3. S.V. Artemov et al. // Phys. At. Nucl. 1996. V. 59. P. 454
4. Л. Д. Блохинцев., И. Борбей., Э. И. Долинский // ЭЧАЯ. 1977. Т.8. С. 1189
5. С. Гончаров и др. // ЯФ, 1982, Т. 35, С.662
6. G.K. Nie, //Bull. Rus. Acad. Sci. Phys., 2005, V.69, P. 100
7. G.K. Nie, S.V. Artemov // Bull. Russ. Acad. of Sc.: Physics. 2007, V. 71, P. 1762
8. G.K. Nie, //arXiv:1106.3731v2 [nucl-th] 21Jun2011
9. С. А. Азимов, У. Р. Арифханов и др. // Яд. Физ. 1975, Т. 22, С. 225
10. Р. Б. Бегжанов, И. Р. Гуламов и др. // Изв. АН СССР, сер. физ. 1985, Т.49, N1, С. 111
11. С.М. Perey and F.G. Perey // Atom. And Nucl. Data Tables, 1976, **17**, 1-101
12. S. E. Darden, G. Murillo and S. Sen // Nucl. Phys. **A266** (1976) 29-52
13. A.M. Mukhamedzhanov et al, // Phys. Rev. C, 1997, V.56, P. 1302.

М.К. Жунусбеков, Н.Н. Застрожнова, О.А. Новолодская, Т.Х. Садыков  
Физико-технический институт, Алматы, Казахстан

В высокогорных экспериментах, проводимых на высоте 3340 метров над уровнем моря, с помощью ионизационного калориметра и рентгеноэмульсионной камеры (РЭК) было зарегистрировано взаимодействие в атмосфере при первичной энергии  $E_0 \geq 10^{15}$  эВ, которое характеризуется наличием "гало" в РЭК и ядерно-электронных каскадов в калориметре. "Гало" - диффузное пятно засветки на рентгенографической пленке и ядерной эмульсии, сопровождающее следы заряженных частиц в гамма-семействах (т.е. в стволах ШАЛ). Гало может быть обусловлено как эффектом перекрытия периферийных областей визуально обнаруженных высокоэнергичных электронно-фотонных каскадов (ЭФК), так и большим количеством подпороговых, малоэнергичных ЭФК. На уровнях наблюдения в РЭК использовалась рентгеновская пленка (РТ-6) и ядерная фотоэмульсия (Р-2Т).

Важным вопросом при изучении взаимодействий, приводящих к образованию гало в свинцовой части РЭК, является: частицами каких энергий формируется гало?

Для анализа было выбрано одно из взаимодействий, в котором в свинцовой части РЭК образовалось гало с видимыми размерами  $\sim 400$  мм<sup>2</sup>. Для определения плотности частиц проведено измерение числа треков на микроскопе МБИ-9 в диаметре  $\sim 5$  мм от центра гало. Измерения фона проводились на расстояниях - 30 см от центра гало. На рис. 1 приведено распределение по плотности треков частиц и зерен в зависимости от расстояния от центра гало.



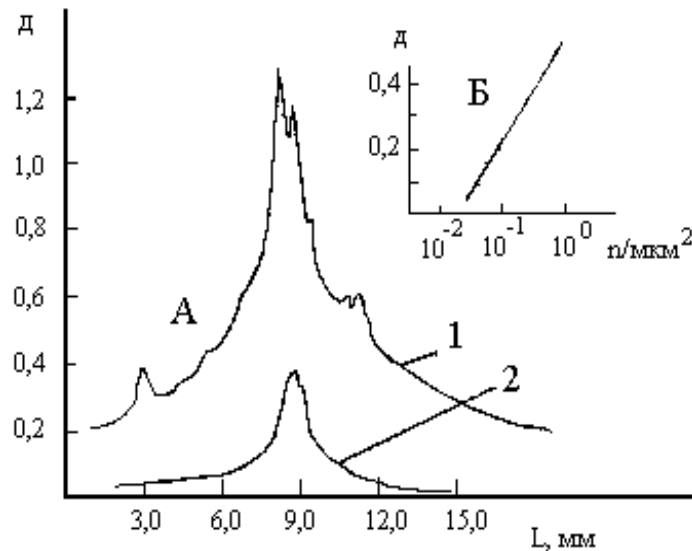
1-для надфоновых отдельных зерен и их групп; 2 – для надфоновых треков различных направлений; 3 – для треков, имеющих направление совпадающее с направлением надпороговых гамма-квантов из состава гало

Рисунок 1 Распределение радиальной плотности частиц и зерен в гало

Были выделены отдельно треки частиц, совпадающие по направлению с наиболее энергичными гамма-квантами из анализируемого семейства, треки частиц всех направлений, а также отдельные зерна и их группы по два-три зерна. Фоновые плотности треков частиц и зерен при шестимесячной экспозиции составили для частиц, направление которых совпадает с направлением наиболее энергичных гамма-квантов  $(2,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$  частиц/мкм<sup>2</sup>, для треков частиц различных направлений  $(5,0 \pm 0,8) \cdot 10^{-2}$  частиц/мкм<sup>2</sup> и для отдельных зерен и их групп  $0,44 \pm 0,08$  зерен/мкм<sup>2</sup>. Размер зерен составил 0,5—0,7 мкм<sup>2</sup>. В среднем, для данного семейства с гало каждый трек частицы образовывал на своем пути в эмульсии 7 - 9 зерен.

Из рисунка видно, что в составе гало присутствуют надфоновые треки частиц разных направлений, а также значительное количество надфоновых зерен и их групп [1]. Что касается треков частиц различных направлений, то это, по-видимому, малоэнергичные электроны, рассеявшиеся в свинцовом поглотителе РЭК под различными углами. Происхождение надфоновых зерен не очень ясно: они образованы электронами с энергиями менее 1 КэВ [2]. В любом случае становится очевидным необходимость дальнейших исследований проблемы формирования гало.

Далее было проведено сравнение степени общего потемнения ядерной эмульсии с потемнением, обусловленным вкладом релятивистских частиц. С этой целью фотометрировался разрез вдоль гало по центру на фотометре МФ-4 с диафрагмой 48 мкм с шагом 100 мкм на протяжении 26 мм. На рис. 2 цифрой 1 показано распределение по плотности потемнения через центр гало. Цифрой 2 на этом же рисунке показано распределение по плотности потемнения на этом же участке гало за счет релятивистских частиц.



1-распределение по плотности потемнения через центр гало;  
2- распределение по плотности потемнения на этом же участке гало за счет релятивистских частиц;

Б- калибровочная зависимость  $D = f(n)$

Рисунок 2. - Зависимость степени потемнения в ядерной эмульсии от плотности частиц.

Потемнение, обусловленное релятивистскими частицами определялось следующим образом. Треки подсчитывались с помощью микроскопа МБИ-9. Для пересчета плотности треков в фотометрическую плотность потемнения ядерной эмульсии было измерено несколько ЭФК на этой же пленке на расстоянии 8 см. от центра семейства и гало. Путем сравнения степени потемнения ядерной эмульсии  $D$  и плотности числа релятивистских частиц  $n$  была получена калибровочная зависимость  $D = f(n)$ , показанная на рис.2-Б. Из рис.2-А видно, что релятивистскими частицами можно объяснить только ~10% полного потемнения ядерной эмульсии. Существенная доля степени потемнения вызвана малоэнергичными частицами (по-видимому ~1 КэВ [2]), которые образуют в эмульсии короткие треки (1-3 зерна).

Энергия гало измеренная методом сканирования по методике предложенной Вротняком [3], составила 4200 ТэВ. Энергия ЭФК составляющих гало и измеренных методом счета треков составила 690 ТэВ.

С учетом 10% количества электронов, имеющих релятивистские скорости, получим, что энергия, выделившаяся в гало, составляет 1200 ТэВ. Таким образом, измерения энергии гало методом предложенным в работе [4], приводит к завышению энергии гало в 3 раза.

Следовательно, при объяснении механизма рождения и развития гало, а также при определении энергии нельзя игнорировать малоэнергичные частицы.

#### Список использованной литературы

1. К.М. Мукашев, Т.Х. Садыков Физика, астрофизика космических лучей и аномальные эффекты в адронных взаимодействиях – Алматы, 2011.- 375 с.
2. Пауэл С. Перкинс Д. и др» Исследование элементарных частиц фотографическим методом. Москва, Изд-во Иностран. лит., 1962, С.43
3. Pietrak T., Wrotniak J. //In:Proc. 16<sup>th</sup> Intern. Cosm. Ray Conf. Kyoto, 1979, vol.7, p.193-196.
4. Wrotniak A. Simulation of the nuclear interaction means of the N-quantum model //Zesz. Nauk. U.L. 1977,V.60, p.165-170.

### ПОИСК ТЯЖЕЛЫХ НЕЙТРОННЫХ КЛАСТЕРОВ В ДЕЛЕНИИ ЯДЕР $^{252}\text{Cf}$

Г.Н. Дудкин, А.А. Гарапацкий, В.Н. Падалко

Физико-технический институт Национального исследовательского Томского политехнического университета,  
634030 Томск, Россия

#### Введение

Настоящая работа является продолжением исследований, выполненных ранее в Томском политехническом университете, по поиску тяжелых нейтронных ядер (кластеров) в делении ядер  $^{235}\text{U}$  [1-3]. Под нейтронными кластерами понимается новый тип ядерной материи – стабильное образование, связанные ядерными силами нейтроны ( $^x n$ ), где  $x$ - количество связанных нейтронов. В проведенных исследованиях для поиска тяжелых нейтронных кластеров использовалась реакция тройного деления ядер  $^{235}\text{U}$ . В этой реакции помимо двух тяжелых осколков могут испускаться легкие заряженные частицы. Ожидалось, что в тройном делении кроме вылета нейтронноизбыточных

изотопов легких элементов, будут образовываться и нейтронные кластера, если они существуют. Поиск тяжелых нейтронных ядер велся по специфическим реакциям, которые они могут производить в соответствующих мишенях - детекторах (так называемый метод наведенной активности). Для исследований использовался ядерный реактор Томского политехнического университета. Были получены экспериментальные указания на образование нейтронных кластеров с  $x \geq 10$  в тройном делении ядер  $^{235}\text{U}$  при активации мишеней-детекторов из: теллура [1], свинца [2] олова [3], кремния [4].

Для получения дополнительных доказательств существования тяжелых нейтронных ядер в настоящей работе для поиска нейтронных ядер было решено использовать источник нейтронов - спонтанно делящийся изотоп  $^{252}\text{Cf}$ . Источник нейтронов размещен в цилиндре с двойными стенками из нержавеющей стали марки 1X18H10T., общей массой 10.3 г и герметизирован. Масса источника-  $^{252}\text{Cf}$  на момент изготовления составляла 5.2 мкг, с момента изготовления источника прошло 36.5 лет. Идея поиска состояла в том, чтобы использовать эффект накопления за длительный промежуток времени изотопов ядер с большим периодом полураспада, образовавшихся за счет: либо взаимодействия нейтронных кластеров с ядрами элементов, входящих в состав нержавеющей стали; либо аномального тройного деления  $^{252}\text{Cf}$ ; либо аномального кластерного распада  $^{252}\text{Cf}$ .

### Постановка эксперимента. Измерения

Рассчитаем количество делений произошедших за время жизни источника  $^{252}\text{Cf}$ . Начальное количество ядер  $^{252}\text{Cf}$  равно:  $Nn = m \cdot N_A / A$ , где  $m$ -масса источника,  $N_A$ - число Авогадро,  $A$ - количество нуклонов в ядре (атомный номер).

Через промежуток времени  $t$  в источнике осталось  $N1(t)$  ядер  $^{252}\text{Cf}$ . Убыль ядер происходила за счет  $\alpha$ -х процессов:  $\alpha$ -распада, с постоянной распада  $\lambda_\alpha = 8.05289 \cdot 10^{-9} \text{ c}^{-1}$ ; спонтанного деления, с постоянной спонтанного деления  $\lambda_{SF} = 2.56849 \cdot 10^{-10} \text{ c}^{-1}$ . За этот же промежуток времени произошло  $N2(t)$  делений.

Нетрудно показать, что:

$$N1(t) = Nn \cdot e^{-(\lambda_\alpha + \lambda_{SF}) \cdot t}$$

$$N2(t) = \frac{\lambda_{SF} \cdot Nn \cdot (1 - e^{-(\lambda_\alpha + \lambda_{SF}) \cdot t})}{\lambda_\alpha + \lambda_{SF}} \quad (1)$$

Расчет дает, что в начальный момент в источнике было  $Nn = 1.242 \cdot 10^{16}$  ядер  $^{252}\text{Cf}$ . Через 36.5 лет  $t = 1.151064 \cdot 10^9$  с в источнике осталось  $N1 = 8.696 \cdot 10^{11}$  ядер. За это время произошло делений  $N2 = 3.86 \cdot 10^{14}$  и образовалось  $7.68 \cdot 10^{14}$  осколков деления. Оставшиеся в источнике к настоящему времени ядра  $^{252}\text{Cf}$  в количестве  $N1 = 8.696 \cdot 10^{11}$  ядер делятся с интенсивностью  $J_{SF} = N1 \cdot \lambda_{SF} = 223$  делений/с, образуя осколки деления с интенсивностью  $J_{FF} = J_{SF} \cdot 2 = 446$  ядер/с и нейтроны с интенсивностью  $J_n = J_{SF} \cdot 3.75 = 836$  н/с.

Среди образовавшихся за 36.5 лет осколков деления к настоящему времени могли выжить только ядра изотопов с большим периодом полураспада. Задачей эксперимента было обнаружение таких ядер.

С этой целью источник помещался на расстоянии 9.4 см от входного окна полупроводникового детектора  $\gamma$ -квантов из сверхчистого германия (при этом загрузка спектрометра  $\sim 5\%$ ) и измерялся спектр  $\gamma$ -квантов от него. Измерительная камера окружена слоем свинца толщиной 5 см, для подавления фоновой загрузки от радиоактивных источников окружающей среды ( $^{40}\text{K}$ ,  $^{232}\text{Th}$  и т.д.) Эффективность регистрации  $\gamma$ -квантов определена по эталонным источникам  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и для интервала энергий  $\gamma$ -квантов 59–2640 кэВ и для указанной геометрии лежит в диапазоне 0.65–0.08 %. Энергетическое разрешение детектора по линиям  $^{60}\text{Co}$  (1173.24, 1332.5 кэВ) определено равным 1.8 кэВ. Было выполнено 3 серии измерений спектра длительностью 66 часов, 60 часов и 84 часа. Фон измеряли 96 часов. В спектрах обнаружены 259  $\gamma$ -линий различной интенсивности. Большинство  $\gamma$ -линий принадлежало осколкам деления, имеющих небольшой период полураспада. Велся поиск долгоживущих изотопов, идентификация изотопов производилась по энергии  $\gamma$ -квантов и по соотношению интенсивностей линий  $\gamma$ -квантов. Были идентифицированы следующие изотопы:  $^{85}\text{Kr}$  ( $T_{1/2} = 10.756$  лет);  $^{102m}\text{Rh}$  ( $T_{1/2} = 3.742$  год);  $^{108m}\text{Ag}$  ( $T_{1/2} = 438$  лет);  $^{113m}\text{Cd}$  ( $T_{1/2} = 13.6$  год);  $^{125}\text{Sb}$  ( $T_{1/2} = 2.758$  год);  $^{133}\text{Ba}$  ( $T_{1/2} = 10.52$  год);  $^{134}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 2.0652$  год);  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2} = 30.08$  год);  $^{150}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 36.9$  год);  $^{152}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 13.537$  год);  $^{154}\text{Eu}$  ( $T_{1/2} = 8.593$  год);  $^{158}\text{Tb}$  ( $T_{1/2} = 180$  год);  $^{243}\text{Am}$  ( $T_{1/2} = 7370$  лет);  $^{243}\text{Cm}$  ( $T_{1/2} = 29.1$  год);  $^{249}\text{Cf}$  ( $T_{1/2} = 351$  год);  $^{251}\text{Cf}$  ( $T_{1/2} = 898$  лет). Ядра изотопов  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{102m}\text{Rh}$ ,  $^{108m}\text{Ag}$ ,  $^{113m}\text{Cd}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{150}\text{Eu}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{158}\text{Tb}$  по-видимому относятся к осколкам деления.

### Анализ результатов измерений

Чтобы выполнить количественные расчеты и сопоставить их с данными по вероятности образования осколков деления, полученными другими авторами, были выполнен анализ процесса накопления во времени долгоживущих осколков деления. Было получено следующее выражение для накопления осколков  $N3(t)$ , без учета вклада других цепочек радиоактивного распада осколков деления в данный изотоп:

$$N3(t) = \frac{\lambda_{SF} \cdot Nn \cdot P_2 \cdot (e^{-(\lambda_\alpha + \lambda_{SF}) \cdot t} - e^{-\lambda_{FF} \cdot t})}{\lambda_{FF} - \lambda_\alpha - \lambda_{SF}} \quad (2)$$

Здесь:  $\lambda_{FF}$  - постоянная распада осколка деления;  $P_2$  - вероятность образования ядер данного изотопа в делении.

Экспериментально, количество образовавшихся ядер данного изотопа определялось по известной формуле:

$$N3_{\text{exp}} = \frac{S}{\lambda_{FF} \cdot \varepsilon \cdot I_\gamma \cdot t_{\text{meas}}} \quad (3)$$

Где:  $S$  - площадь под пиком  $\gamma$ -линии в спектре,  $\varepsilon$  - эффективность регистрации  $\gamma$ -кванта соответствующей энергии,  $I_\gamma$  - квантовый выход для данной  $\gamma$ -линии изотопа,  $t_{\text{meas}}$  - время набора  $\gamma$ -спектра на германиевом спектрометре.

В качестве репера был взят осколок деления изотоп цезия  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=30.08$  год,  $E_{\gamma}=661.657$  кэВ,  $I_{\gamma}=85.1\%$ ). Для этого изотопа существует хороший набор экспериментальных данных и вероятность образования его в делении  $^{252}\text{Cf}$  определена достаточно точно [5]. Подгонка формулы (2), где единственным свободным параметром является  $P_2$ -вероятность кумулятивного образования ядер изотопа  $^{137}\text{Cs}$ , к экспериментально полученному значению числа ядер  $N_{Z_{exp}}$  дало значение  $P=4.95\pm 0.29\%$ . Из [5] разброс значений  $P=4.4\div 5.2\%$ . Расчетное значение из библиотеки ENDF/B-VII.0 равно  $P=5.02\pm 0.21\%$  [6]. Как видим, наблюдается неплохое согласие нашего результата для кумулятивного выхода ядер изотопа  $^{137}\text{Cs}$  с расчетными данными и данными других экспериментов.

В данной работе мы не будем рассматривать и анализировать вероятность образования в делении  $^{252}\text{Cf}$  ядер изотопов, которые входят в стандартный набор осколков деления, так как это отдельная тема. Отметим только, что содержание в продуктах деления изотопа  $^{154}\text{Eu}$  аномально высокое и превышает расчетное значение на порядок. В спектре не обнаружено  $\gamma$ - линий изотопов, которые могли бы создаваться за счет захвата нейтронных кластеров на ядрах элементов, содержащихся в оболочке источника, выполненной из нержавеющей стали.

Ядра изотопа  $^{85}\text{Kr}$  ( $T_{1/2}=10.756$ лет,  $E_{\gamma}=513.997$  кэВ,  $I_{\gamma}=0.434\%$ ) могли бы образоваться за счет реакции захвата нейтронного кластера на ядра изотопов германия, содержащихся в детекторе из сверхчистого германия, например -  $^{74}\text{Ge}(n,\gamma)^{85}\text{Kr}$ . Однако ядра  $^{85}\text{Kr}$  могут быть осколками деления с вероятностью  $P=2.2\cdot 10^{-2}\%$ , которая значительно выше вероятности образования нейтронного кластера.

Наиболее вероятным указанием на эффект существования нейтронных кластеров мог бы быть процесс кластерного распада ядер  $^{252}\text{Cf}$  по схеме:



Ранее, при исследовании спонтанного деления  $^{252}\text{Cf}$  был установлен факт холодного деления ядра калифорния на два осколка, которое называют также безнейтронным [7]. В этом процессе осколки или сразу образуются в основном состоянии, или возбуждены слабо, так что испускают только гамма-кванты небольших энергий, а нейтроны испустить не могут. Поэтому практически вся высвобождающаяся энергия переходит в кинетическую энергию осколков. Холодное двойное деление интересно тем, что представляет собой как бы промежуточный процесс между обычным спонтанным делением и испусканием ядром тяжелого кластера. Во втором процессе массы двух фрагментов различаются очень сильно (в 6-10 раз), и его природа кажется близкой к природе давно известного альфа-распада. Открыт новый вид естественной радиоактивности в 1984 году [8].

Возможность осуществления любого распада ядер в принципе определяется тем, разрешен ли он законом сохранения энергии или нет. Иными словами, важно, достаточно ли энергии  $Q$  для того, чтобы произошел распад (для спонтанных распадов  $Q > 0$ ). Для элементов, находящихся во второй половине Периодической таблицы элементов Менделеева и имеющих среднюю энергию связи на один нуклон в ядре меньше, чем у более легких элементов, это требование удовлетворяется для большого числа различных вариантов распадов. Однако распад даже в случае выполнения этого условия не всегда может быть экспериментально обнаружен: очень часто вероятность прохождения частиц сквозь потенциальный барьер в поверхностной области ядер оказывается ничтожно малой. Потенциальный барьер образуется вследствие того, что на положительно заряженную частицу, находящуюся вблизи поверхности ядра, действуют со стороны ядра две противоположно направленные силы: ядерная сила притяжения и кулоновская сила отталкивания. Сложение соответствующих потенциалов и приводит к особой форме результирующего потенциала в виде потенциального барьера.

Несмотря на экспериментальные трудности при исследовании кластерного распада он интенсивно исследуется экспериментально и теоретически и получено много интересных результатов (см. [9] и ссылки там). Результаты экспериментального исследования кластерного распада говорят о том, что его вероятность очень мала. Верхний предел на эмиссию  $^{24,26}\text{Mg}$  из ядра  $^{232}\text{Th}$  составляет  $T_{1/2} \geq 10^{29}$  с; отношение периодов полураспада  $^{242}\text{Cm}$  на  $^{34}\text{Si}$  и альфа частицу составляет  $T_{\alpha}/T_{\text{Si}}=10^{-15.8}$ ; период полураспада для эмиссии  $^{14}\text{C}$  из ядра  $^{223}\text{Ra}$   $T_{1/2}=10^{11}$  с и  $T_{\alpha}/T_{\text{C}}=10^{8.9}$ .

Мы предполагаем, что поскольку в реакции (4) кластером является нейтронный кластер, не обладающий электрическим зарядом, то вероятность этого процесса будет выше.

Были рассмотрены каналы кластерного распада (4) от  $x=2$  до  $x=12$ . Для малой кратности кластеров, распад  $^{252}\text{Cf}$  на кластеры  $^{23,4,x}$  не может быть проанализирован, поскольку ядра  $^{250}\text{Cf}$ ,  $^{249}\text{Cf}$ ,  $^{248}\text{Cf}$  участвуют в процессе накопления в высокопоточном ядерном реакторе  $^{252}\text{Cf}$  и их «следы» остались в изготовленном источнике. Для большой кратности кластеров, распад  $^{252}\text{Cf}$  на кластеры  $^{212,x}$  не может быть проанализирован, поскольку в базе данных Nuclear Data Services МАГАТЭ отсутствуют надежные сведения о свойствах ядер  $^{240}\text{Cf}$ .

**Кластер с  $x=5$ :** образуется  $^{247}\text{Cf}(T_{1/2}=3.1$  час,  $P_{\alpha,3}=99.97\%$ )  $\rightarrow$   $^{247}\text{Bk}(T_{1/2}=1.38\cdot 10^3$  лет,  $P_{\alpha}=99.97\%$ )  $\rightarrow$   $^{243}\text{Am}(T_{1/2}=7.37\cdot 10^3$  лет,  $P_{\alpha}=100\%$ ) - участвует в цепочке накопления  $^{252}\text{Cf}$ , его  $\gamma$ - линии присутствуют в спектре.

**Кластер с  $x=6$ :** образуется  $^{246}\text{Cf}(T_{1/2}=35.7$  час,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{242}\text{Cm}(T_{1/2}=162.5$  дней,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{238}\text{Pu}(T_{1/2}=86.4$  лет,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{234}\text{U}(T_{1/2}=2.47\cdot 10^5$  лет,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{230}\text{Th}(T_{1/2}=8.4\cdot 10^4$  лет,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{226}\text{Ra}(T_{1/2}=1.6\cdot 10^3$  лет,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{222}\text{Rn}(T_{1/2}=3.8$  дней,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{218}\text{Po}(T_{1/2}=3.05$  минут,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{214}\text{Pb}(T_{1/2}=26.8$  минут,  $P_{\beta^-}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{214}\text{Bi}(T_{1/2}=19.9$  минут,  $P_{\beta^-}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{214}\text{Po}(T_{1/2}=164$  мкс,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{210}\text{Pb}(T_{1/2}=22.2$  года,  $P_{\beta^-}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{210}\text{Bi}(T_{1/2}=5.02$  день,  $P_{\beta^-}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{210}\text{Po}(T_{1/2}=138.4$  день,  $P_{\alpha}=100\%$ )  $\rightarrow$   $^{206}\text{Pb}$  (**стабилен**). Большинство образующихся в этой цепочке радиоактивных превращений изотопов не имеют ярких аналитических линий  $\gamma$ - квантов, за исключением  $^{214}\text{Pb}$  ( $E_{\gamma}=351.9321$ ,  $I_{\gamma}=35.6\%$ ),  $^{214}\text{Bi}$  ( $E_{\gamma}=609.32$ ,  $I_{\gamma}=45.49\%$ ). Однако эти  $\gamma$ - линии принадлежат и осколкам деления:  $^{103}\text{Ru}$  и  $^{102}\text{Y}$ .



**Кластер с  $x=7$ :** образуется  $^{245}\text{Cf}(T_{1/2}=45 \text{ минут}, P_{\alpha}=36\%, P_{\beta,\gamma}=64\%) \rightarrow ^{245}\text{Bk}(T_{1/2}= 4.98 \text{ дней}, P_{\beta,\gamma}=100\%) \rightarrow ^{245}\text{Cm}(T_{1/2}= 9.3 \cdot 10^3 \text{ лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{241}\text{Pu}(T_{1/2}= 13.2 \cdot \text{лет}, P_{\alpha}=100\%)$  - этот изотоп присутствует в радиоактивной цепочке накопления  $^{252}\text{Cf}$ .

**Кластер с  $x=8$ :** образуется  $^{244}\text{Cf}(T_{1/2}=19.4 \text{ минуты}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{240}\text{Cm}(T_{1/2}= 27 \text{ дней}, P_{\alpha}=99.5\%) \rightarrow ^{236}\text{Pu}(T_{1/2}= 2.86 \cdot \text{лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{232}\text{U}(T_{1/2}= 68.9 \text{ лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{228}\text{Th}(T_{1/2}= 1.91 \cdot \text{лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{224}\text{Ra}(T_{1/2}= 3.63 \text{ дня}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{220}\text{Rn}(T_{1/2}= 55.6 \text{ с}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{216}\text{Po}(T_{1/2}= 0.145 \text{ с}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{212}\text{Pb}(T_{1/2}= 10.6 \text{ час}, P_{\beta,\gamma}=100\%) \rightarrow ^{212}\text{Bi}(T_{1/2}= 60.55 \text{ минут}, P_{\beta,\gamma}=64\%, P_{\alpha}=36\%) \rightarrow \beta^- \rightarrow ^{212}\text{Po}(T_{1/2}= 45.1 \text{ с}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  (стабилен). Распад  $^{212}\text{Bi}$  по альфа каналу дает  $^{208}\text{Tl}(T_{1/2}= 3.05 \text{ мин}, P_{\beta,\gamma}=100\%) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  (стабилен). Хорошая аналитическая линия в этой цепочке радиоактивных превращений есть только у изотопа  $^{208}\text{Tl}(E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}, I_{\gamma}=99.8\%)$ . Эта линия обнаружена в  $\gamma$ - спектре источника  $^{252}\text{Cf}$ , причем эта линия существует и в фоновом спектре и ее происхождение связано с ториевой радиоактивностью ( $^{232}\text{Th}(T_{1/2}= 1.4 \cdot 10^{10} \text{ лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow \dots \rightarrow ^{208}\text{Tl}(T_{1/2}= 3.05 \text{ мин}, P_{\beta,\gamma}=100\%, E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}, I_{\gamma}=99.75\%) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  (стабилен)). После вычитания фона число событий в спектре под  $\gamma$ - линией  $E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}$  было обработано с целью получения информации о вероятности гипотетического канала реакции  $^{252}\text{Cf} \rightarrow n + ^{244}\text{Cf}$ .

Рассмотрим распад калифорния по 3-м каналам:

1. Альфа - распад:  $\lambda_{\alpha} = 8.05289 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}$  ( $T_{1/2}=2.645 \text{ лет}$ ), вероятность  $P_0=96.9\%$
2. Деление:  $\lambda_{\text{SF}} = 2.56849 \cdot 10^{-10} \text{ (} T_{1/2}=86 \text{ лет)}$ , вероятность  $P_1=3.1\%$
3. Гипотетический канал распада через нейтронный кластер:  
 $^{252}\text{Cf}(N_1, \lambda_{\text{cluster}}) \rightarrow ^{236}\text{Pu}(N_2, \lambda_2 = 7.6889 \cdot 10^{-9} \text{ с}^{-1}, T_{1/2}= 2.858 \text{ лет}) \rightarrow ^{232}\text{U}(N_3, \lambda_3 = 2.19 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}, T_{1/2}= 68.9 \text{ лет}) \rightarrow ^{228}\text{Th}(N_4, \lambda_4 = 1.1498 \cdot 10^{-8} \text{ с}^{-1}, T_{1/2}= 1.91 \text{ лет})$

Решаем систему уравнений для 3-х цепочек распада с учетом убывания концентрации  $^{252}\text{Cf}$  за счет  $\alpha$ - распада и деления с начальными условиями:

$$N_1(0) = N_n, N_2(0) = 0, N_3(0) = 0, N_4(0) = 0,$$

где  $N_n$  – исходное число ядер  $^{252}\text{Cf}$  (36.5 лет назад).

$$\begin{cases} \frac{dN_1}{dt} = -N_1 \cdot (\lambda_{\alpha} + \lambda_{\text{SF}} + \lambda_{\text{cluster}}) \\ \frac{dN_2}{dt} = N_{\text{SF}} \cdot \lambda_n - N_2 \cdot \lambda_2 \\ \frac{dN_3}{dt} = N_2 \cdot \lambda_2 - N_3 \cdot \lambda_3 \\ \frac{dN_4}{dt} = N_3 \cdot \lambda_3 - N_4 \cdot \lambda_4 \end{cases} \quad (5)$$

Где  $N_1 - N_4$  - число ядер соответствующих изотопов.

Аналитическое решение этой системы (здесь не приводим из-за громоздкости) позволяет оценить постоянную распада  $^{252}\text{Cf}$  на нейтронный кластер  $\lambda_{\text{cluster}}$  по измеренной активности  $^{208}\text{Tl}$ , наработанной за  $T = 36.5 \text{ лет}$ .

Расчеты по этим формулам дали следующий результат: количество накопленных за 36.5 лет ядер  $^{208}\text{Tl}$  равно  $N_{\text{Tl}} = (2.26 \pm 0.4) \cdot 10^9$ ; постоянная кластерного распада -  $\lambda_{\text{cluster}} = 7.1 \cdot 10^{-14} \text{ с}^{-1}$ ; период полураспада -  $T_{\text{cluster}} = 3.095 \cdot 10^5 \text{ лет}$ ; отношение периодов полураспада  $\alpha$ - распада и кластерного распада -  $T_{\alpha} / T_{\text{cluster}} = 8.8 \cdot 10^{-6}$ .

Таким образом, в нашем эксперименте получена большая вероятность образования нейтронного кластера с кратностью  $x=8$  в делении ядер  $^{252}\text{Cf}$ . В работе [10] авторы получили ограничение на выход нейтронных кластеров  $P < 10^{-7}$ .

Рассмотрим, какие фоновые процессы могут имитировать распад  $^{252}\text{Cf}$  на нейтронный кластер с кратностью  $x=8$ .

1. Распад  $^{252}\text{Cf}$  на  $\alpha$ - частицу. Длинная цепочка радиоактивных превращений сопровождающая  $\alpha$ -распад  $^{252}\text{Cf}$  и заканчивающаяся цепочкой:  $^{208}\text{Tl}(T_{1/2}= 3.05 \text{ мин}, P_{\beta,\gamma}=100\%) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  (стабилен), проходит через цепочку -  $^{232}\text{Th}(T_{1/2}= 1.4 \cdot 10^{10} \text{ лет}, P_{\alpha}=100\%) \rightarrow \dots \rightarrow ^{208}\text{Tl}(T_{1/2}= 3.05 \text{ мин}, P_{\beta,\gamma}=100\%) \rightarrow ^{208}\text{Pb}$  (стабилен). Однако, чтобы получить в таком процессе такую же активность  $\gamma$ - линии  $E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}$ , какая получена в эксперименте, необходимо, чтобы в источнике было 6.2 мг  $^{252}\text{Cf}$ , а не 5.2 мкг.

2. Появление  $\gamma$ - линии  $^{208}\text{Tl} E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}$  в спектре может быть обусловлено прямым возбуждением стабильного ядра  $^{208}\text{Pb}$  за счет реакции  $^{208}\text{Pb}(n, n' \gamma) ^{208}\text{Pb}^* \rightarrow E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}$ . Для оценочных расчетов были использованы следующие данные: энергетический спектр нейтронов источника – типичный для деления; интенсивность нейтронов на сегодня составляет  $J_n = 836 \text{ н/с}$ ; масса свинца, окружающая камеру  $M=20 \text{ кг}$ ; эффективность регистрации  $\gamma$ - квантов с  $E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}$ , вылетающих со стенок камеры  $\varepsilon=6 \cdot 10^{-6}$ ; сечение реакции  $^{208}\text{Pb}(n, n' \gamma) ^{208}\text{Pb}^*$ , усредненное по спектру деления-  $\sigma=100 \text{ мб} = 1 \cdot 10^{-25} \text{ см}^2$  [11]. С этими данными вклад реакции не превышает 5%.

3. Радиоактивность  $^{208}\text{Bi}(T_{1/2}= 3.68 \cdot 10^5 \text{ лет}, E_{\gamma}=2614.5 \text{ кэВ}, I_{\gamma}=99.8\%)$ , который может появиться в источнике  $^{252}\text{Cf}$  за счет кластерного распада  $^{252}\text{Cf} \rightarrow ^{208}\text{Bi} + ^{44}\text{P}$ . Расчет по формулам (5) дает для этого случая: постоянную кластерного распада -  $\lambda_{\text{cluster}} = 2.98 \cdot 10^{-10} \text{ с}^{-1}$ ; период полураспада -  $T_{\text{cluster}} = 73 \text{ года}$ ; отношение периодов полураспада  $\alpha$ - распада и кластерного распада -  $T_{\alpha} / T_{\text{cluster}} = 3.6 \cdot 10^{-2}$ . На сегодняшний день не существует данных о таких больших вероятностях кластерного распада  $^{252}\text{Cf}$ .

**Кластер с  $x=9$ :** образуется  $^{243}\text{Cf}(T_{1/2}= 10.7 \text{ минут}, P_{\beta,\gamma}=86\%, P_{\alpha}=14\%) \rightarrow ^{243}\text{Bk}(T_{1/2}= 4.5 \text{ час}, P_{\beta,\gamma}=99.85\%) \rightarrow ^{243}\text{Cm}(T_{1/2}= 29.1 \text{ года}, P_{\alpha}=99.7\%) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(T_{1/2}= 2.44 \cdot 10^4 \text{ лет}, P_{\alpha}=100\%)$ . В этой цепочке  $\gamma$ - линии изотопа  $^{243}\text{Cm}(E_{\gamma}=228.18$

кэВ,  $I_\gamma=10.6\%$   $E_\gamma=277.6$  кэВ,  $I_\gamma=14.0\%$ ) перекрываются теми же  $\gamma$ - линиями изотопа  $^{239}\text{Np}$ , который образуется в источнике за счет  $\alpha$ - распада  $^{243}\text{Am}$ , который в свою очередь, является промежуточным изотопом в цепочке накопления  $^{252}\text{Cf}$  и в спектре источника есть эти  $\gamma$ - линии. Рассмотрение же  $\gamma$ - линий изотопов в цепочке радиоактивных превращений  $^{239}\text{Pu}$  не имеет смысла, так как с этого изотопа начинается цепочка наработки ядер  $^{252}\text{Cf}$  на высокопоточном ядерном реакторе.

**Кластер с  $x=10$ :** образуется  $^{242}\text{Cf}$  ( $T_{1/2}= 3.7$  минут,  $P_{\beta,\beta}=20\%$ ,  $P_\alpha=80\%$ ) $\rightarrow$ э.з. $\rightarrow$  $^{242}\text{Bk}$  ( $T_{1/2}= 7.0$  мин.,  $P_{\beta,\beta}=99.85\%$ ) $\rightarrow$ э.з. $\rightarrow$  $^{241}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}= 162.8$  дней,  $P_\alpha=99.7\%$ ) $\rightarrow$  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}= 87.7\cdot 10^4$  лет,  $P_\alpha=100\%$ ) $\rightarrow$   $^{234}\text{U}$  ( $T_{1/2}= 2.47\cdot 10^5$  лет,  $P_\alpha=100\%$ ) $\rightarrow$ ... $\rightarrow$  $^{206}\text{Pb}$ . В этой цепочке нет хороших аналитических линий  $\gamma$ - квантов и, кроме того, слишком большие периоды полураспада.

$^{242}\text{Cf}$  ( $T_{1/2}= 3.7$  минут,  $P_{\beta,\beta}=20\%$ ,  $P_\alpha=80\%$ ) $\rightarrow$  $\alpha$  $\rightarrow$  $^{238}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}= 2.4$  час,  $P_{\beta,\beta}=90.7\%$ ) $\rightarrow$  $^{238}\text{Am}$  ( $T_{1/2}= 98$  мин.,  $P_{\beta,\beta}=100\%$ ) $\rightarrow$  $^{238}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}=86$  лет,  $P_\alpha=100\%$ ) $\rightarrow$  $^{234}\text{U}$  ( $T_{1/2}= 2.47\cdot 10^5$  лет,  $P_\alpha=100\%$ ) $\rightarrow$ ... $\rightarrow$  $^{206}\text{Pb}$ . Это соответствует предыдущему случаю.

**Кластер с  $x=11$ :** образуется  $^{241}\text{Cf}$  ( $T_{1/2}= 3.78$  минут,  $P_{\beta,\beta}=75\%$ ,  $P_\alpha=25\%$ ) $\rightarrow$ э.з. $\rightarrow$   $^{241}\text{Bk}$  ( $T_{1/2}=4.6$  мин.,  $P_{\beta,\beta}=75\%$ ) $\rightarrow$ э.з. $\rightarrow$  $^{241}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}=32.8$  дня,  $P_{\beta,\beta}=99\%$ ) $\rightarrow$  $^{241}\text{Am}$  ( $T_{1/2}=432.6$  года,  $P_\alpha=100\%$ ) $\rightarrow$   $^{237}\text{Pu}$  ( $T_{1/2}= 45.2$  дня,  $P_{\beta,\beta}=100\%$ ) $\rightarrow$  $^{237}\text{Np}$  ( $T_{1/2}= 2.14\cdot 10^6$  лет,  $P_\alpha=100\%$ ). Дальше цепочку рассматривать не имеет смысла ввиду большого периода полураспада  $^{237}\text{Np}$ . В этой цепочке, также как и в предыдущей, нет хороших аналитических линий.

#### Заключение

Таким образом, проанализированы все возможные каналы кластерного распада  $^{252}\text{Cf}$  с испусканием нейтронных кластеров с кратностью  $x=5\div 11$ . В большинстве каналов не удалось обнаружить эффект испускания нейтронных кластеров: либо ввиду перекрытия искоемых  $\gamma$ - линий  $\gamma$ - линиями ядер изотопов, возникших в источнике в результате других процессов; либо ввиду отсутствия аналитических линий  $\gamma$ - квантов с высоким квантовым выходом, либо из-за большого периода полураспада. Только для канала испускания нейтронного кластера с кратностью  $x=8$  получены экспериментальные указания на существование такого процесса с периодом полураспада  $T_{\text{cluster}}= 3.095\cdot 10^5$  лет. Следует отметить, что вероятность этого процесса относительно вероятности процесса испускания  $\alpha$ - частицы довольно высокая  $P_{\text{cluster}}= \lambda_{\text{cluster}}/ \lambda_\alpha= 8.8\cdot 10^{-6}$ . Для того чтобы проверить полученные результаты, следует провести эксперимент со свежим источником  $^{252}\text{Cf}$ .

#### Список литературы

1. Варлачев В.А., Гарпацкий А.А., Дудкин Г.Н., и др. // Известия РАН. Сер. физ. 2008. Т. 72. № 3. С. 344.
2. Варлачев В.А., Гарпацкий А.А., Дудкин Г.Н., и др. // Известия РАН. Сер. физ. 2009. Т. 73. № 2. С. 154.
3. Дудкин Г.Н., Варлачев В.А., Гарпацкий А.А., и др. // Ядерная и радиационная физика: Материалы 7-й Международной конференции. Алматы, 8-11 сентября 2009. Алматы: ИЯФ НЯЦ РК. 2010. С. 102
4. Варлачев В.А., Дудкин Г.Н., Емец Е.Г. и др. // Известия Вузов. Физика. 2010. Т. 53 №10/2. С. 50-54
5. Горбачев В.М., Замятин Ю.С., Лбов А.А. // Взаимодействие излучений с ядрами тяжелых элементов и деление ядер. Справочник. – М. Атомиздат. 1976.
6. Libraries ENDF/B-VII.0. IAEA Nuclear Data Services. www-nds.iaea.or.at
7. Ter-Akopian G.M., Hamilton J.H., Oganessian Yu.Ts. et al. // Phys. Rev. Lett. 1994. V.73. P. 1477
8. Rose H.J., and Jones G. A. // Nature (London) 1984. V. 307. P. 245.
9. Poenaru D.N., Gherghescu R. A., and Greiner W.. // Phys. Rev. C. 2011. V. 83 P. 014601
10. Александров Д.В., Никольский Е.Ю., Новацкий Б.Г., Степанов Д.Н.. // ЯФ. 1990. Т.52. С. 933.
11. Nellis D.O., Morgan I.L. and Hudspeth E.L.. // Phys. Rev. C. 1974. V. 9. No. 5. P. 1972.

## ПОТЕНЦИАЛЬНАЯ ЭНЕРГИЯ ДЕЛЯЩЕГОСЯ ЯДРА В ТОЧКЕ РАЗРЫВА ДЛЯ РАЗНЫХ МОД ДЕЛЕНИЯ

В.П. Пикуль, Ю.Н. Коблик, Г.А. Абдуллаева, А.Ф. Небесный

*Институт Ядерной Физики, 100214, Ташкент, Узбекистан, e-mail: koblik@inp.uz*

### ВВЕДЕНИЕ

Первые измерения массовых распределений продуктов деления (ПД) при низкоэнергетическом и спонтанном делении показали существование двух мод деления – асимметричной и симметричной. Дальнейшие, более точные, измерения показали существование четырех основных мод деления. Теоретические расчеты поверхности потенциальной энергии деформирующегося ядра при спуске от седловой точки к точке разрыва также показывают наличие многодолинного рельефа этой поверхности.

К настоящему времени получены экспериментальные результаты, показывающие существование осколков деления вплоть до  $A=66$  а.е.м., что говорит о существовании суперасимметричных мод деления. Вполне возможно существование кластерного механизма распада [1,2]. На масс-спектрометре «ЛОЭНГРИН» в Гренобле измерены массовые выходы продуктов деления легкой группы большинства актинидных ядер вплоть до  $Z=28$  и  $A=68$  [3,4]. Измерения массовых выходов продуктов деления тяжелой группы при делении ядер  $^{235}\text{U}$  тепловыми нейтронами, выполненные на ташкентском масс-спектрометре [5], показали наличие тонкой структуры при  $A=153-154$  (с учетом

эмиссии нейтронов  $A=155-157$ ). Однако, недостаток экспериментальных данных по суперасимметричному делению в тяжелой группе пока не позволяет точно установить механизм распада (обычный делительный или кластерный).

В рамках модели равновесия в точке разрыва [6] проведен анализ потенциальной энергии и формы делящейся системы в точке разрыва для суперасимметричной моды S3 и стандартной моды S2, связанной с существованием деформированной оболочки вблизи  $A \sim 140$  ( $Z=54-56$ ,  $N=88$ ), в широком диапазоне кинетических энергий ( $E_k$ ) ПД. Поскольку в большинстве моделей используется  $\{c, h, \alpha\}$ -параметризация, то и наши расчеты были выполнены в зависимости от этих параметров. При фиксированных значениях  $E_k$  и заданном отношении масс осколков изменялись параметры деформаций обоих осколков и определялись минимальные значения потенциальной энергии в точке разрыва. В распределениях потенциальной энергии в зависимости от деформаций наблюдаются от 1 до 3 минимумов. Самые глубокие минимумы соответствуют наиболее вероятному разделению и определяют наиболее вероятную кинетическую энергию  $E_{kh}$  тяжелого осколка и полную кинетическую энергию ТКЕ. У легких осколков наиболее вероятная кинетическая энергия  $E_{kl} \sim 98$  МэВ в случае деления  $^{235}\text{U}$  в широком диапазоне массовых чисел. Расчеты параметров деформаций проводились при этой фиксированной энергии легкого осколка и изменяющейся энергии тяжелого осколка и велись по методике, опубликованной в работе [7].

Целью нашей работы являлось определение минимумов потенциальной энергии в точке разрыва при делении  $^{235}\text{U}$  тепловыми нейтронами в зависимости от  $E_k$  осколков деления, ТКЕ и размеров шейки для разных мод деления.

### 1. ПАРАМЕТРЫ ДЕФОРМАЦИЙ ДЕЛЯЩЕЙСЯ СИСТЕМЫ

На контурных картах потенциальной энергии в зависимости от деформаций в предразрывном состоянии проявляются несколько минимумов при определенном соотношении деформаций. Существенное влияние на количество минимумов оказывают размеры шейки. Чтобы установить влияние этого параметра на потенциальную энергию делящейся системы были выполнены расчеты для соприкасающихся эллипсоидов и с размерами шейки от 1 до 3 фм и разных отношений масс образующихся осколков в зависимости от деформаций осколков при разных значениях  $E_{kh}$  и фиксированной  $E_{kl} = 98.3$  МэВ. На рис.1 показано, в какой зависимости находятся деформации тяжелого и легкого осколков для делительной моды S3 в случае соприкасающихся эллипсоидов. Основные состояния для этих осколков  $\beta_{0l}=0.053$  и  $\beta_{0h}=0.27$ . Возможно большое сочетание деформаций осколков для одних и тех же значений  $E_{kl}$  и  $E_{kh}$ .

На рис.2 показана зависимость деформации тяжелого осколка от деформации легкого осколка для делительной моды S2. Основные состояния для этих осколков  $\beta_{0l}=0.255$  и  $\beta_{0h}=0.145$ . Здесь уже возможно меньшее сочетание деформаций. На рис.1 и 2 приводятся деформации в случае соприкасающихся эллипсоидов. Для осколков с конечными размерами шейки деформации находятся в более широком интервале.

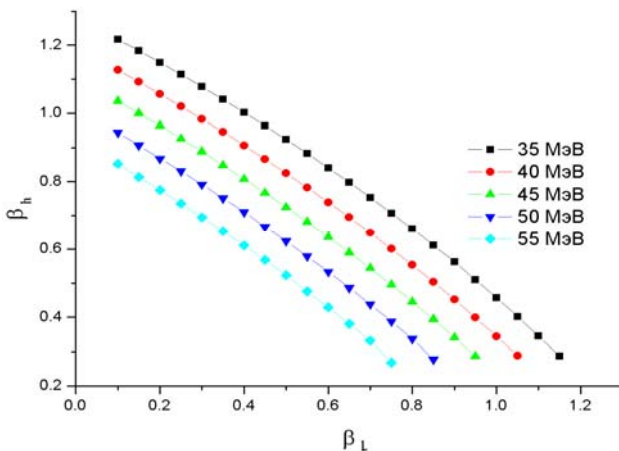


Рис.1. Зависимость деформации тяжелого осколка при разных  $E_{kh}$  от деформации легкого осколка ( $E_{kl}=98.3$  МэВ) для  $A_l=82$  и  $A_h=154$ .

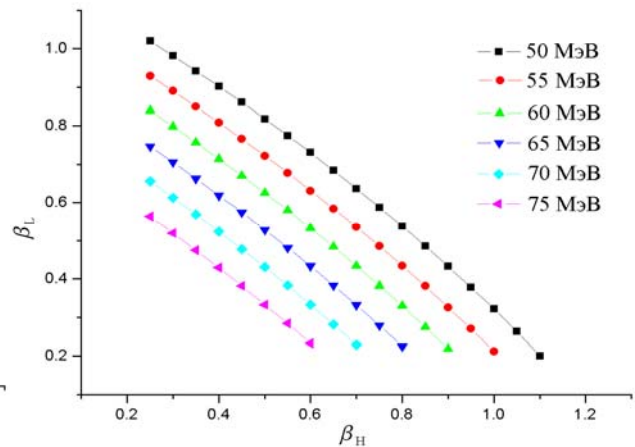


Рис.2. Зависимость деформации тяжелого осколка при разных  $E_{kh}$  от деформации легкого осколка ( $E_{kl}=98.3$  МэВ) для  $A_l=94$  и  $A_h=142$

### 2. РАЗМЕРЫ ШЕЙКИ В ТОЧКЕ РАЗРЫВА

Наиболее вероятное разделение для моды S3 происходит при размерах шейки 1.4-1.8 фм, что несколько меньше условия потери ядром стабильности при форме ядра с радиусом шейки  $R_N \cong 0.3R_0$ , где  $R_0$  – радиус сферического ядра. На рис.3 показана зависимость потенциальной энергии  $U$  от деформации осколков для разных значений радиуса шейки  $R_n$ . Значения  $U$  отсчитывались от соответствующих значений в основном состоянии. На рис.4 приводится зависимость  $U$  от деформации осколков с  $R_n=2.2$  фм для делительной моды S2 с разными значениями  $E_k$ . Такой размер шейки является наиболее вероятным для моды S2. Минимальные значения  $U$  наблюдаются при  $\beta_l \cong 0.45$  и  $\beta_h \cong 0.85$ . В первом случае разрыв происходит примерно посередине шейки, так как малые оси образующихся осколков близки по размерам. Положение центра масс также находится примерно посередине шейки. Во втором случае легкий осколок более деформирован, центр масс сдвигается к тяжелому осколку, и разрыв происходит ближе к тяжелому осколку.

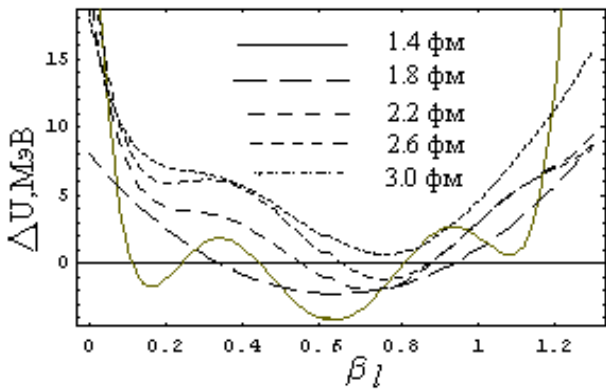


Рис.3. Потенциальная энергия в точке разрыва пары осколков с  $A_l=82$ ,  $Z_l=32$  и  $A_h=154$ ,  $Z_h=60$  при фиксированных значениях  $E_{kl}=98.3$  МэВ и  $E_{kh}=40$  МэВ с разными радиусами шейки в зависимости от деформации легкого осколка.

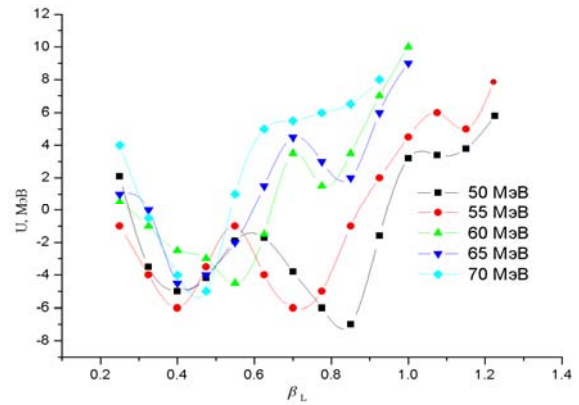


Рис.4. Зависимость  $U$  от деформации  $\beta_l$  для пары осколков с  $E_{kl}=98.3$  МэВ для  $A_l=94$  и  $A_h=142$  для разных значений  $E_{kh}$  ( $R_n=2.2$  фм)

### 3. ПОТЕНЦИАЛЬНАЯ ЭНЕРГИЯ В ТОЧКЕ РАЗРЫВА

Относительный выход первичных осколков деления можно найти по формуле [8]

$$Y(\{A_i, Z_i, \beta_l\}) = Y_0 \exp(-U(\{A_i, Z_i, \beta_l\}, R_m, E^*) / T), \quad (1)$$

где  $Y_0$  – полный выход осколка данной массы [9],  $T = (E^* / a)^{1/2}$ ,  $a=A/12$  МэВ<sup>-1</sup>,  $R_m = c_l + c_h + 0.5$  фм,  $E^*$  – энергия возбуждения делящейся системы в точке разрыва, определяемая по формуле [8]

$$E^*(\{A_i, Z_i, \beta_l\}, R_b) = Q - \text{TKE}(\{A_i, Z_i, \beta_l\}) - E_{\text{def}}(\{A_i, Z_i, \beta_l\}) + S, \quad (2)$$

где  $R_b = c_l + c_h + 1.5$  фм,  $S = 8$  МэВ – энергия возбуждения, вносимая тепловым нейтроном. Энергия деформации определяется по формуле [10]

$$E_{\text{def}} = 17.8 A_i^{2/3} [B_s(\beta_l) - B_s(\beta_{0i}) + 1.439 Z_i^2 / A_i (B_c(\beta_l) - B_c(\beta_{0i}))] \quad (3)$$

Относительные поверхностные  $B_s$  и кулоновские  $B_c$  энергии рассчитывались по [11].

На рис.5 приводится зависимость  $U$  от деформации  $\beta_l$  для пары осколков в случае соприкасающихся сферидов с  $E_{kl}=98.3$  МэВ,  $E_{kh}=65$  МэВ для  $A_l=94-96$  и  $A_h=140-142$ . Потенциальная энергия  $U$  отсчитывается от её значения в основном состоянии образующихся осколков. Четко проявляется глубокий минимум  $U$  при  $\beta_l \approx 0.4$ , соответствующий наиболее вероятному способу разделения (мода S2).

Обычно предполагается, что  $E^*$  распределяется в осколках пропорционально массе. Однако наши расчеты показывают, что для одного и того же значения ТКЕ энергия деформации в осколках может меняться весьма значительно. Следовательно, и энергия возбуждения будет распределяться в зависимости от деформации, определяя эмиссию нейтронов из осколков. На рис.6 показана зависимость  $E_{\text{def}}$  для мод S2 и S3 и ТКЕ=148 МэВ. Видно, что при одном и том же значении ТКЕ энергия деформации изменяется на несколько МэВ. Равенство  $E_{\text{def}}$  для обоих осколков соответствует наиболее вероятному разделению.

Используя данные расчеты, можно проводить сравнение теоретических и экспериментальных данных.

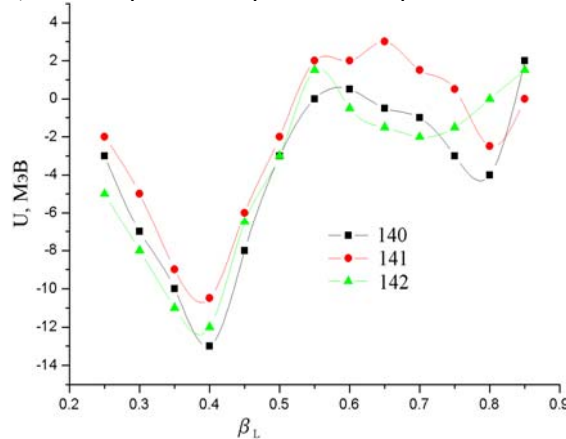


Рис.5. Зависимость  $U$  от деформации  $\beta_l$  для пар осколков ( $A_l=96$ ,  $A_h=140$ ), ( $A_l=95$ ,  $A_h=141$ ), ( $A_l=94$ ,  $A_h=142$ ) в случае соприкасающихся эллипсоидов. ( $E_{kl}=98.3$  МэВ,  $E_{kh}=65$  МэВ).

При спуске от седловой точки к точке разрыва делящееся ядро проходит точку бифуркации, после которой ядро попадает в долину, соответствующую  $\beta_h \approx 0.35$  и  $\beta_l \approx 1.0$ , либо в долину, соответствующую  $\beta_h \approx 0.85-0.95$  и  $\beta_l \approx 0.75-0.85$  (наиболее вероятное разделение) для моды S3. Возможен также спуск в долину, соответствующую  $\beta_h \approx 1.1-1.3$  и  $\beta_l \approx 0.2-0.3$ . Спуск в одну из этих долин определяет энергию возбуждения образующихся осколков и, следовательно, эмиссию нейтронов. Соотношение между глубиной этих долин возможно и определяет количество испущенных вторичных электронов.

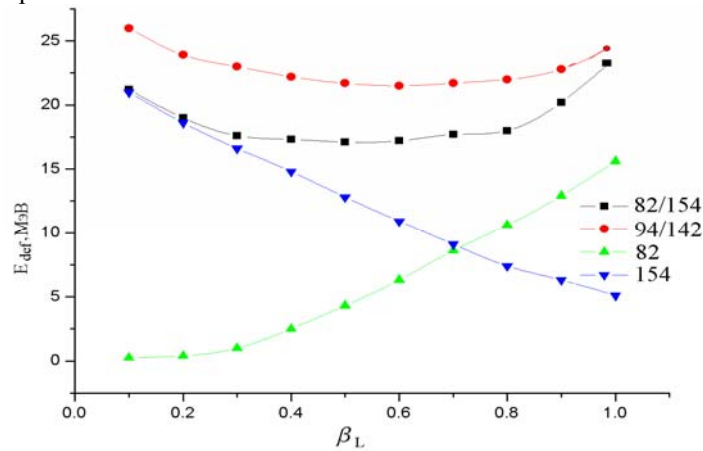


Рис.6. Зависимость энергии деформации  $E_{def}$  пары осколков  $A_l/A_h=82/154$  (мода S3) и  $A_l/A_h=94/142$  (мода S2) от деформации легкого осколка и изменение  $E_{def}$  отдельных осколков в зависимости от  $\beta_l$

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках модели равновесия в точке разрыва выполнены расчеты потенциальной энергии для делительных мод S2 и S3 в широком диапазоне кинетических энергий образующихся осколков и размеров шейки  $R_n=1-3$  фм. Определено, что для моды S3 наиболее вероятное значение  $R_n=1.4-1.8$  фм. Для моды S2 -  $R_n=2.0-2.4$  фм.

Показано, что деформации образующихся осколков изменяются в широком диапазоне при одинаковых значениях кинетических энергий. Найдены точки бифуркаций для мод S2 и S3.

Проведено сравнение экспериментальных результатов [3,4] с расчетными. Наиболее вероятные заряды, кинетические энергии и относительные выходы имеют хорошее совпадение.

1. Ю.В. Пятков, Р.А. Шехмаматъев // ЯФ, 1994, т. 57, с. 1182.
2. А.А. Говердовский, В.Ф. Митрофанов, В.А. Хрячков // ЯФ, 1995, т. 58, с. 1546.
3. J.L. Sida, P.Ambruster et al. // Nucl. Phys. A502, 1989, p. 233.
4. I. Tsekhanovich, H.O. Denschlag et al. // Nucl. Phys. A658, 1999, p. 217.
5. V.P. Pikul, U.Yu. Jovliev, Yu.N. Koblik et al. // ЯФ, 2005, т. 68, с. 1.
6. B.D. Wilkins, E.P. Steinberg and R.R. Chasman // Phys.Rev. C 14, 1976, p.1832
7. Ю.Н. Коблик, В.П. Пикуль и др. // Известия РАН, т.71, №3, 2007, с. 420.
8. A.V. Andreev, G.G., Adamian et al.// Eur. Phys. J., A 26, 2005, p. 327.
9. T.R. England and B.F. Rider // LA-UR-94-3106, ENDF-349.
10. F. Dickmann and K. Dietrich. // Nucl.Phys., A129, 1969, p. 241.
11. V.M. Strutinsky, N.Ya. Layshchenko, N.A. Popov. // Nucl.Phys., v.46, 1963, p. 639.

### СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ УПРУГОГО РАССЕЯНИЯ ПРОТОНОВ НА ИЗОТОПАХ ЛИТИЯ В ДИФРАКЦИОННОЙ ТЕОРИИ

Е. Т. Ибраева<sup>1</sup>, М.А. Жусупов<sup>2</sup>, О. Имамбеков<sup>2</sup>, Б. А. Прмантаева<sup>3</sup>, А. Темирбаев<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан; <sup>2</sup>Казахский национальный университет им. аль-Фараби, Алматы, Казахстан; <sup>3</sup> Евразийский национальный университет им. Н.Л. Гумилева, Астана, Казахстан

Интерес к изотопам лития объясняется несколькими причинами: число нуклонов в них оптимально для учета как однонуклонных, так и многочастичных степеней свободы; имеются стабильные –  ${}^6,7\text{Li}$  и нестабильные –  ${}^8,9,11\text{Li}$  изотопы, первые сильно кластеризованы в  $\alpha d$ - и  $\alpha t$ -каналах, вторые обладают экзотической гало или скин структурой. Наиболее известный нестабильный изотоп  ${}^{11}\text{Li}$  имеет гало структуру, которая качественно отличается от оболочечной. Появление новой техники ускорения нестабильных ядер и открытие гало структуры  ${}^{11}\text{Li}$  [1] дало импульс для изучения других нестабильных ядер, в частности, изотопов  ${}^{8,9}\text{Li}$ . Эксперименты проводятся в инверсной кинематике, когда на покоящуюся водородную мишень направляется пучок радиоактивных ядер, полученный в ускорителе в результате ядерных реакций и их вторичного ускорения. Новые эксперименты направлены на измерение

поляризационных наблюдаемых, а также на измерение различных корреляций в движении фрагментов при развале экзотических ядер. Для таких измерений нужны кинематически полные эксперименты, в которых одновременно регистрируются все фрагменты и которые содержат наиболее исчерпывающую информацию о структуре ядра и динамике взаимодействия.

В работе представлена серия расчетов дифференциальных сечений упругого рассеяния протонов на изотопах  ${}^6,7,8,9\text{Li}$  в рамках глауберовской теории многократного дифракционного рассеяния. Использовались трехчастичные волновые функции (ВФ):  $\alpha-p-n$  (для  ${}^6\text{Li}$ ),  $\alpha-t$  (для  ${}^7\text{Li}$ )  $\alpha-t-n$  (для  ${}^8\text{Li}$ ) и  ${}^7\text{Li}-n-n$  (для  ${}^9\text{Li}$ ), с реалистическими потенциалами межкластерных взаимодействий. Исследована чувствительность упругого рассеяния к структуре ядер. Расчеты проведены при энергиях 65 и 200 МэВ, для которых имеются экспериментальные данные [2 – 5]. Привлекательность глауберовского формализма состоит в относительной простоте, отсутствии свободных варьируемых параметров, «микроскопическом» построении оператора, позволяющем рассматривать разные кратности соударения частиц в процессе рассеяния.

Целью наших расчетов является проверка возможности глауберовской теории в описании механизма рассеяния и сравнение характеристик рассеяния на различных изотопах лития, стабильных ( ${}^6,7\text{Li}$ ) и радиоактивных ( ${}^8,9\text{Li}$ ).

В трехчастичных моделях ВФ представляется в виде произведения внутренних функций кластеров  $\Psi_1, \Psi_2, \Psi_3$  (которые полагаются такими же, как ВФ свободных частиц:  $\alpha, t, n, 2n, {}^7\text{Li}$ ) на ВФ их относительного движения  $\Psi^{JM_J}(\mathbf{r}, \mathbf{R})$ :

$$\Psi_{i,f}^{JM_J} = \Psi_1 \Psi_2 \Psi_3 \Psi^{JM_J}(\mathbf{r}, \mathbf{R}), \quad (1)$$

где  $\mathbf{r}$  – координата относительного движения кластеров, ей сопряжен орбитальный момент  $\lambda$ ;  $\mathbf{R}$  – координата относительного движения между центрами масс двух кластеров и оставшимся третьим, ей сопряжен орбитальный момент  $l$ .

Волновая функция взаимного движения  $\Psi^{JM_J}(\mathbf{r}, \mathbf{R})$  рассчитывается путем решения уравнения Шредингера с межкластерными потенциалами взаимодействий. Основной проблемой является выбор потенциалов, т.к. они являются входными параметрами расчета и от них зависит качество ВФ.

Матричный элемент рассеяния в дифракционной теории:

$$M_{if}(\mathbf{q}_\perp) = \sum_{M_i M_f} \frac{ik}{2\pi} \int d\mathbf{p}_\perp d\mathbf{R}_A \exp(i\mathbf{q}_\perp \mathbf{p}_\perp) \delta(\mathbf{R}_A) \langle \Psi_i^{JM_i} | \Omega | \Psi_f^{JM_f} \rangle, \quad (2)$$

индексом « $\perp$ » обозначены двумерные векторы, лежащие в плоскости, перпендикулярной направлению падающего пучка,  $\mathbf{R}_A = \frac{1}{A} \sum_{n=1}^A \mathbf{r}_n$  – координата центра масс ядра,  $\mathbf{p}_\perp$  – прицельный параметр, лежащий в плоскости

перпендикулярной налетающему пучку;  $\mathbf{k}$  – импульс налетающих частиц в с.ц.м.,  $q = 2k \sin \frac{\theta}{2}$  – переданный в реакции импульс,  $\theta$  – угол рассеяния.

Оператор  $\Omega$  в глауберовской теории записывается в виде ряда многократного рассеяния:

$$\Omega = 1 - \prod_{v=1}^A (1 - \omega_v(\mathbf{p}_\perp - \mathbf{p}_{\perp v})) = \sum_{v=1}^A \omega_v - \sum_{v<\mu} \omega_v \omega_\mu + \sum_{v<\mu<\eta} \omega_v \omega_\mu \omega_\eta + \dots (-1)^{A-1} \omega_1 \omega_2 \dots \omega_A, \quad (3)$$

где  $\omega_v$  – профильные функции. Учитывая строение ядер  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^8\text{Li}$  и  ${}^9\text{Li}$ , представленных в трехчастичных моделях, перепишем оператор (3) в альтернативном виде, полагая, что рассеяние происходит не на отдельных нуклонах ядер-мишеней, а на составляющих их кластерах:

$$\Omega = \Omega_1 + \Omega_2 + \Omega_3 - \Omega_1 \Omega_2 - \Omega_1 \Omega_3 - \Omega_2 \Omega_3 + \Omega_1 \Omega_2 \Omega_3, \quad (4)$$

где индексы 1, 2, 3 нумеруют соответствующие кластеры (и нуклоны), входящие в состав ядер  $\alpha, t, n, 2n, {}^7\text{Li}$ .

Профильные функции  $\omega_v$  выражаются через амплитуду протон-нуклонного рассеяния  $f_{pN}(q)$ :

$$\omega_v(\mathbf{p}_\perp - \mathbf{p}_{\perp v}) = \frac{1}{2\pi i k} \int d\mathbf{q}_\perp \exp(-i\mathbf{q}_\perp (\mathbf{p}_\perp - \mathbf{p}_{\perp v})) f_{pN}(q). \quad (5)$$

Учитывая спиновую зависимость в элементарной амплитуде  $f_{pN}(q) = f_{pN}^c(q) + f_{pN}^s(q)$ , запишем матричный элемент рассеяния с учетом спиновой зависимости

$$M_{if}(\mathbf{q}) = M_{if}^c(\mathbf{q}) + M_{if}^s(\mathbf{q}), \quad (5)$$

где  $M_{if}^c(\mathbf{q})$  – центральная,  $M_{if}^s(\mathbf{q})$  – спин-орбитальная часть матричного элемента.

Дифференциальное сечение есть квадрат модуля матричного элемента:

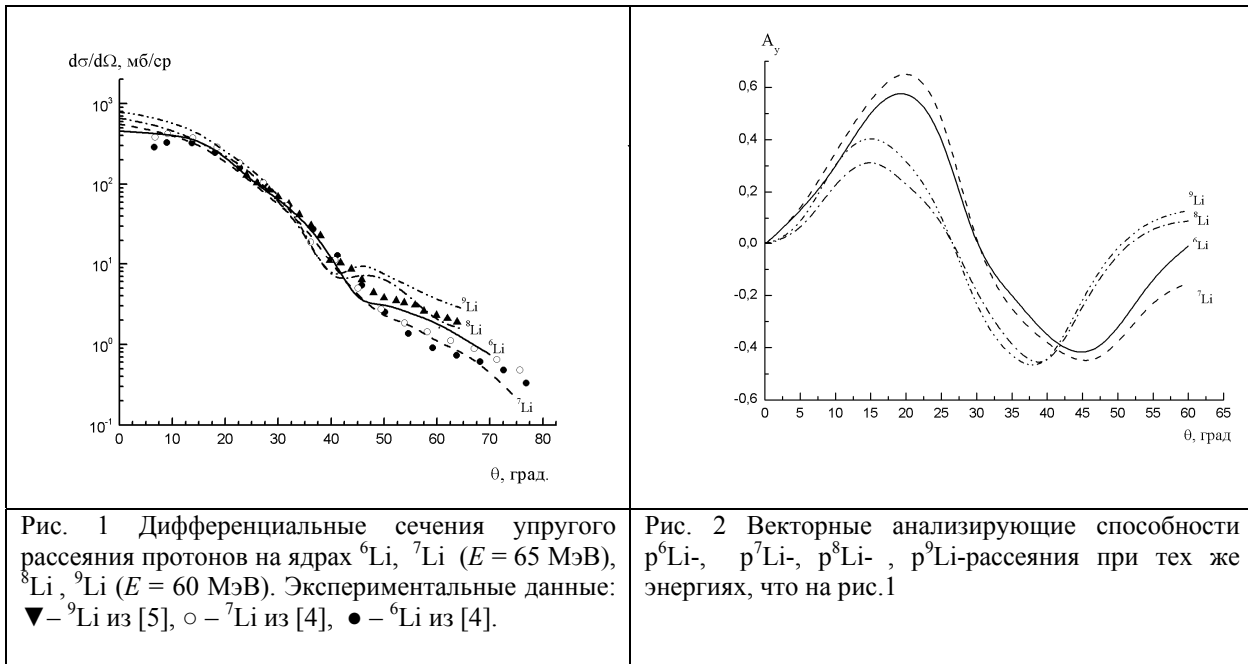
$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{1}{2J+1} \sum_{M_j, M_j'} \left[ |M_{if}^c(\mathbf{q})|^2 + |M_{if}^s(\mathbf{q})|^2 \right]. \quad (6)$$

Анализирующая способность, характеризующая зависимость рассеяния от направления спина налетающего протона, выражается через матричный элемент следующим образом:

$$A_y = \frac{2 \operatorname{Re} [M_{if}^c(\mathbf{q}) M_{if}^{s*}(\mathbf{q})]}{d\sigma/d\Omega}. \quad (7)$$

Техника вычисления матричного элемента с трехчастичными ВФ и оператором (5) подробно рассмотрена в наших предыдущих работах [6, 7].

На рис. 1 представлены теоретические расчеты ДС для ядер  ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^7\text{Li}$ ,  ${}^8\text{Li}$  и  ${}^9\text{Li}$  при близких энергиях  $E = 60$  ( $p^{8,9}\text{Li}$ ) и  $65$  ( $p^{6,7}\text{Li}$ ) МэВ/нуклон. Экспериментальные данные взяты из [5] для  $p^9\text{Li}$  (треугольники) и из [4] для  $p^6\text{Li}$  (закрытые кружки) и  $p^7\text{Li}$  (открытые кружки), для  $p^8\text{Li}$ -рассеяния экспериментальных данных нет, наш расчет является предсказанием. Экспериментальные ДС для всех ядер близки друг к другу (до  $\theta \sim 48^\circ$ ), они монотонно убывают с увеличением угла рассеяния и имеют неявно выраженный минимум (скорее, перегиб в сечении) при  $\theta \approx 45^\circ$ . Однако при больших углах экспериментальное сечение для  $p^9\text{Li}$ -рассеяния убывает медленнее, чем для  $p^6\text{Li}$  и  $p^7\text{Li}$ . Теория адекватно описывает ДС в области передних углов  $40^\circ > \theta > 0^\circ$ , но при углах  $\theta > 45^\circ$  между теорией и экспериментом наблюдаются расхождения. Поскольку исходными посылками глауберовского приближения являются высокие энергии столкновения и передние углы рассеяния, то в области средних углов ( $\theta > 40^\circ$ ) оно не обладает необходимой точностью, как и рассчитанные в нем характеристики. Передние углы рассеяния отвечают большим межнуклонным расстояниям в координатном пространстве, поэтому на основании одинакового поведения ДС для всех изотопов в области передних углов можно сделать вывод, что асимптотическое поведение ВФ всех изотопов примерно одинаково. Об этом же говорят среднеквадратичные радиусы ядер, которые совпадают в пределах ошибок:  $R_m = 2.44(7), 2.50(6), 2.44(6)$  Фм для  ${}^6\text{Li}, {}^8\text{Li}, {}^9\text{Li}$ . С увеличением угла рассеяния переданный импульс увеличивается, частицы больше взаимодействуют во внутренней области ядра, где эффекты корреляции частиц (которые собственно и отличают одну модель от другой), проявляются сильнее, и мы наблюдаем различное поведение угловых распределений.



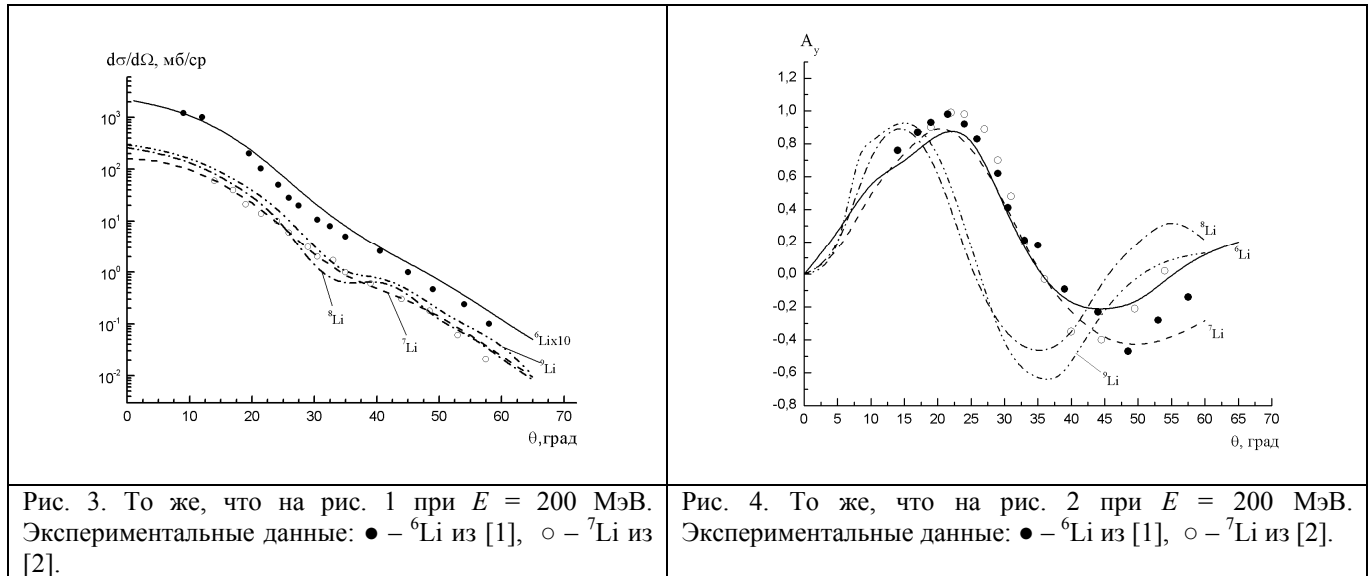
Измерение поляризационных характеристик является сложной экспериментальной задачей даже для стабильных мишеней, а для рассматриваемых нами нестабильных изотопов  ${}^8\text{Li}$ ,  ${}^9\text{Li}$  они не получены до сих пор. Первые сообщения об измерении  $A_y$  при рассеянии 71 МэВ-ных протонов на ядре  ${}^6\text{He}$  в инверсной кинематике, выполненные на ускорителе в RIKEN, появились недавно [8]. Это стало возможным после создания твердой поляризованной протонной мишени, которая может работать в слабом магнитном поле. Теоретический расчет поляризационных характеристик также является более трудной задачей, чем сечений, для которых достаточно учесть центральную часть взаимодействия. При вычислении анализирующей способности необходим учет спин-орбитального взаимодействия в элементарной  $pN$ -амплитуде и спиновой зависимости ВФ. Поэтому поляризационные характеристики более чувствительны к деталям расчета, в частности, к структуре ВФ, чем ДС.

Перейдем к рассмотрению анализирующей способности, представленной на рис.2. Различие в поведении этой характеристики для разных ядер гораздо больше, чем в ДС. Причем если  $A_y$  для  ${}^6,7\text{Li}$  (также как для  ${}^8,9\text{Li}$ ) различаются по абсолютной величине, но подобны друг другу по расположению максимумов и минимумов, то различие между  ${}^6,7\text{Li}$  и  ${}^8,9\text{Li}$  гораздо глубже: абсолютная величина первых в первом максимуме на 0.2 единицы меньше



и их максимумы и минимумы сдвинуты примерно на  $15^\circ$  в область меньших углов. Разброс кривых при малых углах (соответствующих малым переданным импульсам), говорит о влиянии периферической области ядра, тогда как при больших углах (и больших переданных импульсах) свидетельствует о различном вкладе высокоимпульсных компонент ВФ. Надо отметить, что предсказания для этой характеристики, сделанные в работах [4, 9] (в рамках оптической модели с комплексным фолдинг-потенциалом и с Парижско-Гамбургским нелокальным потенциалом), качественно и количественно различаются как с нашими, так и между собой. Это свидетельствует о том, что даже при сравнительно небольших вариациях расчета поляризационные характеристики могут кардинально отличаться друг от друга.

На рис.3 и 4 приведены ДС и  $A_y$  для рассеяния 0.2 ГэВ-ных протонов на изучаемых ядрах. Для стабильных изотопов имеются экспериментальные данные, полученные в [2, 3]. Экспериментальные данные и расчетные кривые ДС на рис.3 для  ${}^6\text{Li}$ -рассеяния умножены на 10, чтобы результаты не перекрывались. Расчетные ДС для  ${}^6\text{Li}$ - и  ${}^7\text{Li}$ -рассеяния адекватно описывают экспериментальные данные. Дифференциальные сечения для  ${}^8\text{Li}$ - и  ${}^9\text{Li}$ -рассеяния незначительно отличаются от  ${}^6\text{Li}$ - и  ${}^7\text{Li}$ -рассеяния только в области минимума ( $\theta \sim 40^\circ$ ).

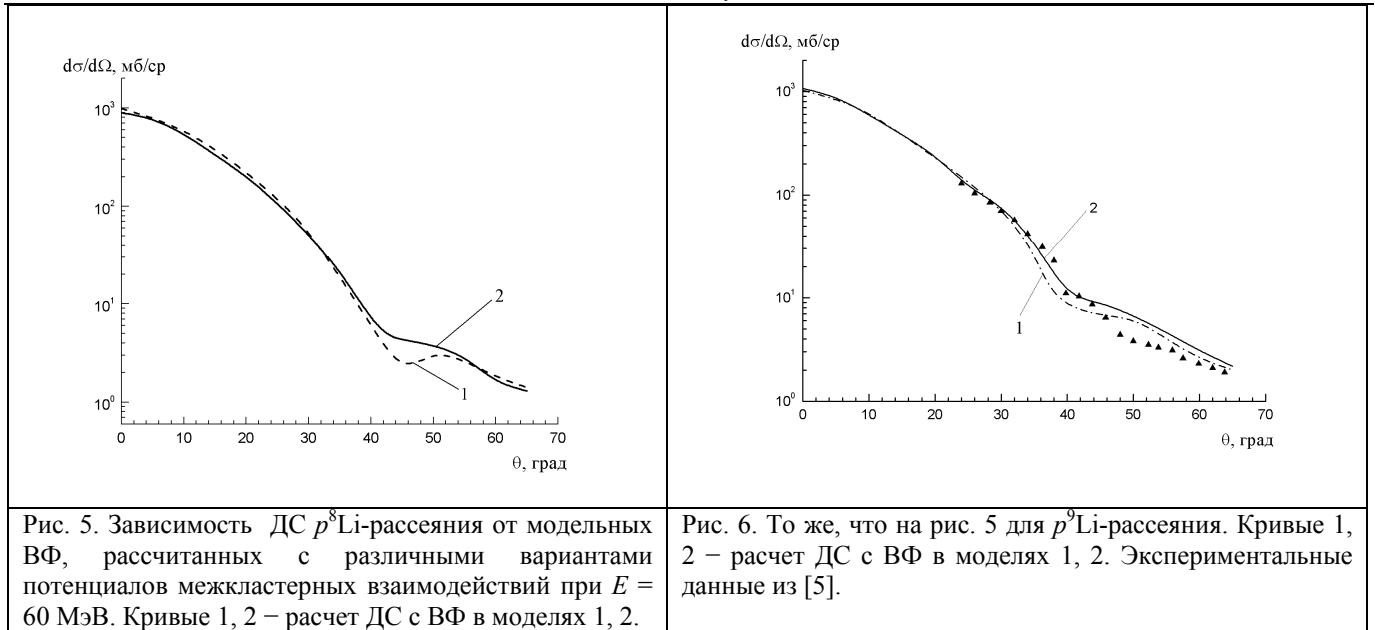


Так же, как и при  $E = 65$  МэВ, анализирующие способности (рис.4) гораздо чувствительнее к рассеянию на различных изотопах. Рассматривая две группы изотопов – стабильные ( ${}^{6,7}\text{Li}$ ) и нестабильные ( ${}^{8,9}\text{Li}$ ), видно, что различие в  $A_y$  сильнее между группами, чем внутри. Если рассматривать разные области переданных импульсов (или углов рассеяния), то при малых углах рассеяния эта характеристика менее чувствительна, чем при больших, т.е. различия проявляются сильнее на малых межнуклонных расстояниях, чем на асимптотике.

Сравнение с экспериментальными данными для  ${}^6\text{Li}$ - и  ${}^7\text{Li}$ -рассеяния показывает, что теория правильно описывает  $A_y$  в первом максимуме до  $\theta \sim 40^\circ$ , однако дальше наблюдаются существенные расхождения. В предыдущих работах [2, 3] ДС и  $A_y$  вычислялись в оптической модели, в первом варианте которой использовался стандартный потенциал Вудса-Саксона, во втором – микроскопический фолдинг-потенциал. Однако эти расчеты также соответствовали эксперименту только до  $\theta < 35^\circ$ . Неверное воспроизведение экспериментальных данных в области больших углов ( $\theta > 35^\circ$ ) по мнению авторов должно быть отнесено за счет недостаточности модели однократного рассеяния и низкого качества определения ядерной плотности.

Рассмотрим зависимость ДС от модельных ВФ на примере  ${}^8\text{Li}$  (рис. 5) и  ${}^9\text{Li}$ - (рис.6) рассеяния при  $E = 60$  МэВ. Кривые 1, 2 на обоих рисунках – расчет ДС с ВФ в моделях 1 и 2, отличающихся потенциалами межкластерных взаимодействий, с которыми рассчитаны ВФ. Как видно из рисунков, обе кривые, одинаково описывая ДС при малых углах рассеяния, существенно отличаются лишь в области минимума. Отличие ВФ  ${}^8\text{Li}$  в моделях 1 и 2 – в  $at$ - и  $tn$ -потенциалах. В модели 2 в  $at$ - и  $tn$ -потенциалах учтено тензорное взаимодействие, которое существенно увеличивает вес компонент с  $L = 2$ . Вклад этих компонент приводит к увеличению квадрупольного момента до значения  $Q = 30.36$  мб, близкого к экспериментальному  $Q_{\text{экс.}} = 32.7(6)$  мб [10]. Для сравнения в модели 1  $Q = 18.94$  мб. Известно [3, 11], что рассеяние на ядрах с большими значениями квадрупольных моментов, таких, как  ${}^7\text{Li}$  ( $Q = -40$  мб),  ${}^9\text{Be}$  ( $Q = 53$  мб) демонстрирует ДС со значительно менее резко выраженной дифракционной картиной, чем на сферически симметричных.

На рис. 6 аналогичная картина представлена для  ${}^9\text{Li}$ -рассеяния. Модели 1 и 2 отличаются  ${}^7\text{Li}n$ -потенциалами. В модели 1 это глубокий притягивающий с запрещенными состояниями в форме Бака без обменных членов, в модели 2 – тот же, с обменными членами. Заполнение минимумов в ДС связано с учетом в  ${}^7\text{Li}n$ -потенциале обменных членов с сильной спиновой зависимостью, что приводит к компонентам ВФ с  $L = 1$  с заметными весами. Степень заполнения минимумов коррелирует с величиной квадрупольного момента  $Q$ : сечению 1 соответствует  $Q = -23.98$  мб; сечению, у которого минимум меньше (кривая 2), соответствует  $Q = -27.9$  мб, при этом  $Q_{\text{экс.}} = -27.4$  мб [12].



**Список литературы**

1. Tanihata I. Neutron halo nuclei. // J. Phys. G. 1996. Vol. 22. P. 157-184.
2. Glower C. W., Foster C. C., Schwandt P. et al. Scattering of polarized protons from  $^6\text{Li}$  at 200 Mev // Phys.Rev. C. 1990. Vol. 41. P. 2487-2504.
3. Glower, C. W., Foster, C. C., Schwandt P. et al. Scattering of polarized protons from  $^7\text{Li}$  at 200 Mev // Phys.Rev. C. 1991. Vol. 43. P. 1664-1676.
4. Moon C.B., Fujimaki M., Herinsaki S. et al. Measurements of  $^{11}\text{Li}+p$  and  $^9\text{Li}+p$  elastic scattering at 60 MeV // Phys.Lett. B. 1992. Vol. 297. P. 39-45.
5. Dortmans P.J., Amos K., Karataglidis S., Raynal J. Microscopic model analyses of the elastic scattering of 65 MeV protons from targets of diverse mass // Phys. Rev. C. 1998. Vol. 58. P. 2249-2260.
6. Жусупов М. А., Ибраева Е. Т. Упругое и неупругое рассеяние адронов на легких ядрах в дифракционной теории // ЭЧАЯ. ОИЯИ. Дубна. 2000. Т. 31. С. 1427-1495.
7. Жусупов М. А., Ибраева Е. Т., Имамбеков О., Сагиндыков Ш. Ш. Структура нейтроноизбыточных изотопов  $^8\text{Li}$  и  $^9\text{Li}$  и ее учет в упругом рассеянии протонов // Ядерная физика. 2008. Т. 71. С. 1300-1313.
8. Uesaka T., Sakaguchi S., Iseri Y. et al. Analyzing power for proton elastic scattering from the neutron-rich  $^6\text{He}$  nucleus // Phys. Rev. C. 2010. Vol. 82. P. 021602 (R)
9. Carr J. A. Elastic scattering of  $^9\text{Li}$  from protons at 60A MeV // Phys. Rev. C. 1997. V. 56. P. 324.
10. Kelley J. H., Godwin J. L., Hu X. et al., Energy levels of light nuclei A=8: Preprint of Triangle Univ. (Durkham: Triangle Univ., 2002. 88p).
11. Kelly J. J. Quadrupole scattering of 135 Mev protons by  $\text{Be}^9$  // Phys. Rev. C. 1988. V. 38. P. 1490-1498.
12. Tilley D. R. et al. Energy levels of light nuclei A=9: Preprint of Triangle Univ. (Durkham: Triangle Univ., 2001. 76p.).

**УЖЕСТОЧЕНИЕ СПЕКТРА ВТОРИЧНЫХ ЧАСТИЦ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ В СТОЛКНОВЕНИЯХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ**

А.Т. Дьяченко<sup>1</sup>, К.А. Гриднев<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Петербургский государственный университет путей сообщения, Санкт-Петербург, Россия;

<sup>2</sup>Санкт-Петербургский государственный университет, Санкт-Петербург, Россия, E-mail: dyachenko\_a@mail.ru

В работе развивается гидродинамический подход для описания столкновений тяжелых ионов в диапазоне энергий 10-100 МэВ/нуклон с учетом испускания вторичных частиц-нейтронов и протонов. Дополнительный вклад в двойное дифференциальное сечение, по отношению к предыдущему рассмотрению этой модели, дает испускание частиц на ранних временах эволюции системы. Проведено сравнение вычисленных сечений испускания частиц с экспериментальными данными во всем диапазоне переходных энергий для различных комбинаций сталкивающихся ядер.

**ВВЕДЕНИЕ**

Переходная область энергий 10-100 МэВ/нуклон сталкивающихся тяжелых ионов представляет постоянный интерес с точки зрения изучения изменения механизма взаимодействия тяжелых ионов. В этой области находится

характерная энергия – энергия Ферми  $E_F \approx 35$  МэВ, этой области принадлежит энергия перехода через «звуковой барьер» для ядерной материи.

В настоящей работе развивается гидродинамический подход для описания спектра вторичных частиц, образующихся в столкновениях тяжелых ионов в диапазоне энергий 10-100 МэВ на нуклон. В работе [1] была рассмотрена эволюция горячего пятна (hot spot) в гидродинамическом приближении, включая стадию сжатия, расширения и разлета по достижении расширяющейся ядерной системой критической плотности. Спектр испускаемых частиц вычислялся по одночастичной функции распределения  $f(\vec{r}, \vec{p}, t)$  на стадии разлета. Недавно [2,3] мы включили в рассмотрение испускание частиц на ранних стадиях эволюции hot spot. Это привело к ужесточению спектра протонов для столкновения ионов  $^{16}\text{O}$  и  $^{197}\text{Au}$  с энергией 20 МэВ/нуклон. Ниже мы приводим сравнение расчетов двойных дифференциальных испускания вторичных частиц с экспериментальными данными во всем диапазоне энергий 10-100 МэВ/нуклон для различных комбинаций сталкивающихся ядер.

### 1. МОДЕЛЬ ДЛЯ РАСЧЕТА

Расчет гидродинамической эволюции hot spot, образующегося в столкновениях тяжелых ионов, описан в [1]. После стадий сжатия и расширения по достижении критической плотности  $\rho^*$  наступает стадия разлета. Плотность

$\rho^*$  определяется только параметрами эффективного взаимодействия из условия  $\frac{\partial W}{\partial \rho} = \frac{\partial P_{\text{int}}}{\partial \rho} = 0$ . Мы используем

взаимодействие типа Скирм VI, где самосогласованный потенциал  $W$  и часть давления  $P_{\text{int}}$ , обусловленная взаимодействием соответственно равны

$$W = \frac{3}{4}b_0\rho + \frac{3}{16}b_3\rho^2, \quad P_{\text{int}} = \frac{3}{8}b_0\rho^2 + \frac{1}{8}b_3\rho^3 \quad (1)$$

с  $b_0 = -1100$  МэВфм<sup>3</sup>,  $b_3 = 17270$  МэВфм<sup>6</sup>,  $\rho^* = -2\frac{b_0}{b_3}$ .

Двойное дифференциальное сечение образования вторичных частиц, при этом, равно

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{2m\sqrt{2mE}}{h^3} 2\pi \int |dl| \int d\vec{r} f(\vec{r}, \vec{p}, t), \quad (2)$$

где функция распределения  $f(\vec{r}, \vec{p}, t)$  для нуклонов с учетом движения среды имеет фермиевский вид

$$f(\vec{r}, \vec{p}, t) = (1 + \exp((\vec{p} - m\vec{v}_0 / 2 - m\vec{v}(\vec{r}, t))^2 / 2mT - \mu / T))^{-1}. \quad (3)$$

Здесь  $\vec{v}(\vec{r}, t)$ ,  $T(\vec{r}, t)$  - поля скоростей и температур, найденные в гидродинамическом приближении в системе равных скоростей сталкивающихся ядер,  $\mu(T)$  - химический потенциал с учетом поверхностного члена в энергии связи нуклона,  $p = \sqrt{2mE}$  - импульс,  $E$  - энергия испускаемых частиц,  $h$  - постоянная Планка,  $l$  - параметр удара.

Формула (2) относится ко времени  $t^*$  достижения системой критической плотности.

Дополнительный вклад в сечение (2) дает испускание частиц на ранних временах [2,3]

$$\frac{d^2\sigma}{dEd\Omega} = \frac{2m\sqrt{2mE}}{h^3} 2\pi \int |dl| \int_0^{t^*} dt \int d\vec{S} \frac{\vec{p}}{m} f(\vec{r}, \vec{p}, t), \quad (4)$$

где  $d\vec{S}$  - элемент поверхности образующегося hot spot. То есть полное дифференциальное сечение определяется суммой выражений (2) и (4), причем последнее слагаемое (4) существенно на хвостах энергетического спектра.

Выражения (2) - (4) написаны для нейтронов. Для протонов в этих выражениях необходимо провести замену  $E \rightarrow E - E_C$ , где  $E_C$  - кулоновский барьер для протонов.

### 2. СРАВНЕНИЕ С ЭКСПЕРИМЕНТОМ

На рис. 1-6 приведено сравнение вычисленных двойных дифференциальных сечений  $d^2\sigma / dEd\Omega$  испускаемых нуклонов с экспериментальными данными для реакций налетающих ядер  $^{12}\text{C}$ ,  $^{14}\text{N}$  и  $^{16}\text{O}$  при энергиях 12, 20, 32, 58 и 86 МэВ/нуклон, а также с более массивными ядрами La+La при энергии 138 МэВ/нуклон.

На рис. 1 сравниваются вычисленные по формулам (2)-(4) спектры нейтронов (сплошные линии) для реакции  $^{12}\text{C} + ^{158}\text{Gd}$  при энергии ионов углерода 152 МэВ, что соответствует 12 МэВ/нуклон, с обработанной жесткой компонентой экспериментальных спектров [4], полученных под углами 25 и 90° (штриховые линии). Здесь приведен также результат расчета (пунктир) по формуле (2), то есть без учета испускания нейтронов (4) на ранней гидродинамической стадии.

Как видно, учет испускания частиц на ранней гидродинамической стадии приводит к ужесточению спектра и улучшает согласие с экспериментом.

Для реакции (315 МэВ)  $^{16}\text{O} + ^{197}\text{Au}$ , что соответствует энергии 20 МэВ/нуклон, согласие вычисленных спектров протонов с экспериментальными [5] под углами  $\theta = 20, 40, 60, 80^\circ$  оказывается вполне удовлетворительным (рис.2). Здесь сплошная линия соответствует спектру, вычисленному по формуле, являющейся суммой выражений (2) и (4).

Пунктир соответствует формуле (2) без учета испарения протонов на ранних гидродинамических стадиях. Видно, что учет вклада (4) ужесточает спектр и улучшает согласие с экспериментом. В расчетах принималось во внимание испарение вторичных частиц из составного ядра, что увеличивает дифференциальное сечение вблизи кулоновского барьера.

На рис. 3 приведено сравнение вычисленного спектра протонов с экспериментальным [6] для реакции  $^{14}\text{N}+^{124}\text{Sn}$  при энергии ионов азота 32 МэВ/нуклон. Выбор энергии обусловлен близостью к энергии Ферми, что символизирует переход от низкоэнергетической динамики к динамике промежуточных энергий.

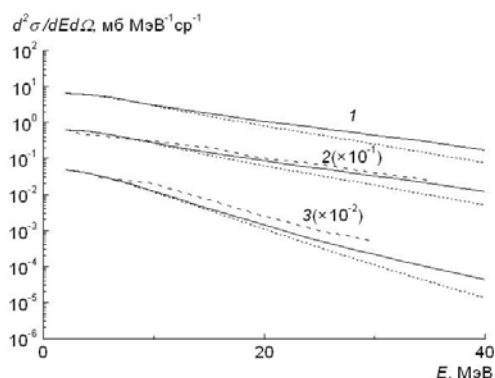


Рис.1

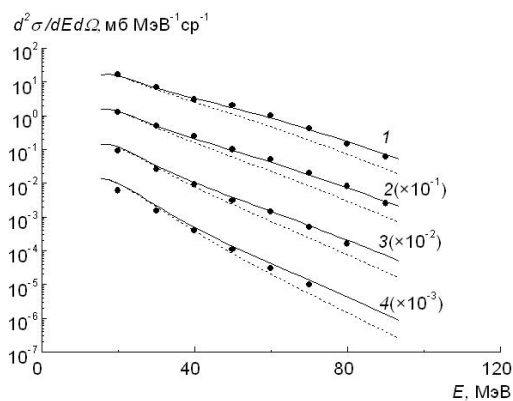


Рис.2

Рис. 1. Вычисленные по сумме выражений (2) и (4) (сплошные линии), а также только с использованием формулы (2) (пунктир), и экспериментальные (штриховые линии) [4] спектры нейтронов, испускаемых в реакции  $^{12}\text{C}+^{158}\text{Gd}$  при энергии ионов  $^{12}\text{C}$  - 12 МэВ/нуклон под углами: 1 -  $0^\circ$ , 2 -  $25^\circ$  и 3 -  $90^\circ$ .

Рис. 2. Вычисленные по сумме выражений (2) и (4) (сплошные линии), а также только по формуле (2) (пунктир), и экспериментальные (точки) [5] спектры протонов, испускаемых в реакции  $^{16}\text{O}+^{197}\text{Au}$  при энергии ионов  $^{16}\text{O}$  - 20 МэВ/нуклон под углами: 1 -  $20^\circ$ , 2 -  $40^\circ$ , 3 -  $60^\circ$  и 4 -  $80^\circ$ .

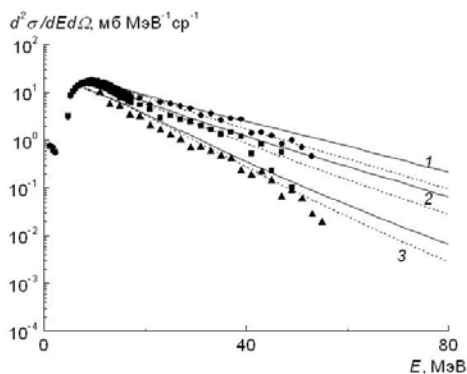


Рис. 3

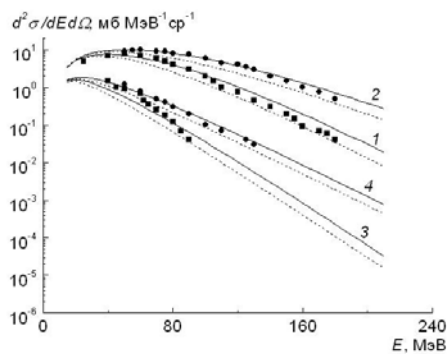


Рис. 4

Рис. 3. Спектры протонов, испускаемых в реакции  $^{14}\text{N}+^{124}\text{Sn}$  при энергии ионов  $^{14}\text{N}$  - 32 МэВ/нуклон под углами: 1-  $45^\circ$ , 2 -  $62^\circ$  и 3 -  $90^\circ$ . Сплошные кривые – результаты расчетов по сумме формул (2) и (4), пунктирные – только по формуле (2), точки - экспериментальные данные из работы [6].

Рис. 4. Спектры протонов, испускаемых в реакции  $^{12}\text{C}+^{108}\text{Ag}$  при энергиях ионов  $^{12}\text{C}$  - 58 (1,3) и 86 (2,4) МэВ/нуклон под углами: 1,2 -  $32^\circ$  и 3,4 -  $90^\circ$ . Обозначения кривых те же, что и на предыдущем рисунке. Сплошные кривые – результаты расчетов по сумме формул (2) и (4), пунктирные – только по формуле (2), точки - экспериментальные данные из работы [7].

Здесь сплошные кривые – спектры, вычисленные по сумме выражений (2) и (4). Пунктир – спектры, вычисленные по формуле (2). Точки – экспериментальные данные, полученные для спектров протонов под углами  $45^\circ$ ,  $62^\circ$  и  $90^\circ$ . Можно видеть имеющееся согласие расчета с экспериментом для выражений, являющихся суммой формул (2) и (4), в особенности для малых углов. Для угла  $90^\circ$  экспериментальные спектры идут несколько ниже расчетных.

На хвостах экспериментальные спектры срезаны, что может быть обусловлено систематическими экспериментальными погрешностями.

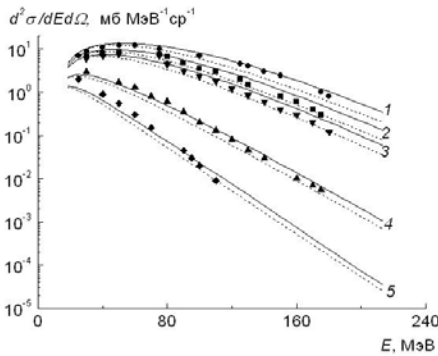


Рис. 5

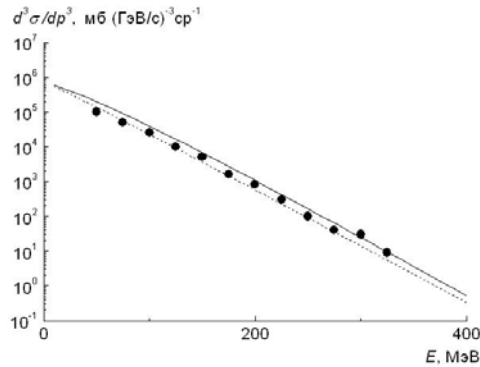


Рис. 6

Рис. 5. Спектры протонов, испускаемых в реакции  $^{12}\text{C}+^{197}\text{Au}$  при энергии ионов  $^{12}\text{C}$  - 86 МэВ/нуклон под углами: 1 – 32°, 2 – 45°, 3- 54°, 4 – 90° и 5 – 120°. Обозначения кривых те же, что и на предыдущем рисунке. Точки – экспериментальные данные из работы [7].

Рис. 6. Спектр протонов, испускаемых в реакции  $^{139}\text{La}+^{139}\text{La}$  при энергии ионов  $^{139}\text{La}$  - 138 МэВ/нуклон под углом 90° в системе центра масс. Обозначения кривых те же, что и на предыдущем рисунке. Точки – экспериментальные данные из работы [8].

Сравнение расчета с экспериментом было проведено для реакций, вызванных ионами углерода  $^{12}\text{C}$  при энергиях 58 и 86 МэВ/нуклон [7]. Так на рис. 4 представлены спектры протонов для реакции  $^{12}\text{C}+^{108}\text{Ag}$  при энергиях 58 МэВ/нуклон (экспериментальные точки – квадраты) и 86 МэВ/нуклон (кружки) для углов  $\theta = 32, 90^\circ$ . Сплошными кривыми представлены спектры, вычисленные по сумме выражений (2) и (4). Пунктир – спектры, соответствующие формуле (2). Можно видеть, что в целом расчет совпадает с экспериментом с учетом ужесточения, определяемого формулой (4).

На рис. 5 приведены результаты сравнения расчетных и экспериментальных кривых (обозначения для различных вариантов расчета те же, что и на предыдущем рисунке) для углов  $\theta=32, 45, 54, 90$  и  $120^\circ$  в случае реакции  $^{12}\text{C}+^{197}\text{Au}$  при энергии 86 МэВ/нуклон [7]. Соотношение между учетом испускания частиц на ранней стадии и экспериментом такое же, как и на предыдущих рисунках. Ужесточение спектра, определяемое выражением (4), улучшает согласие с экспериментальными данными.

На рис. 6 сравниваются вычисленные и экспериментальные спектры протонов для реакции  $^{139}\text{La}+^{139}\text{La}$  при энергии 138 МэВ/нуклон [8] в системе центра масс под углом  $90^\circ$ . Здесь, в соответствии с экспериментальными данными, сравнение с экспериментом проведено для величины  $d^3\sigma / dp^3$ . Как видно, имеется согласие расчета с экспериментом, и ужесточение спектра, определяемое вкладом (4), улучшает это согласие. Эксперимент [8] особенно важен для проверки гидродинамической модели, так как рассматриваются столкновения двух достаточно тяжелых ядер.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, показано, что использование гидродинамической модели вполне приемлемо для описания двойных дифференциальных сечений испускания нуклонов в рассматриваемом диапазоне переходных энергий 10-100 МэВ/нуклон сталкивающихся тяжелых ионов. Из проведенного сравнения с экспериментом видно, что учет испарения частиц на ранней стадии эволюции hot spot приводит к ужесточению спектра испускаемых вторичных частиц и улучшает согласие с экспериментальными данными. Важно, что все характеристики спектра вторичных частиц вычисляются однозначно. Этот подход может быть использован и для релятивистских энергий.

### ЛИТЕРАТУРА

1. Дьяченко А.Т. // ЯФ. 1994. Т. 57. С. 2006.
2. D'yachenko A.T., Gridnev K.A. // J. Mod. Phys. 2011. V. 2. P. 8.
3. Дьяченко А.Т., Гриднев К.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2011. Т. 75. №7. С.1025.
4. Bondorf J.P. et al. // Nucl. Phys. A. 1980. V. 333. P. 285.
5. Symons T.J.M. et al. // Phys. Lett. B. 1980. V. 94. P. 131.
6. Avdeichikov V.V. et al. // Proc. Int. School-Seminar on Heavy Ion Physics (Dubna 993). JINR. E7-93-274. Dubna. 1993. V. 2. P. 238.
7. Jakobsson B. et al. // Phys. Lett. B. 1981. V. 102. P. 121.
8. Claesson G. et al. // Phys. Lett. B. 1990. V. 251. P. 23.

**УЧЕТ ОБОЛОЧЕЧНОЙ СТРУКТУРЫ СТАЛКИВАЮЩИХСЯ ЯДЕР  
В ПРОЦЕССЕ СЛИЯНИЯ-ДЕЛЕНИЯ**

В. Л. Литневский<sup>1</sup>, Г. И. Косенко<sup>2</sup>, Ф. А. Иванюк<sup>3</sup>, В. В. Пашкевич<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Лаборатория теоретической физики ОИЯИ, Дубна, Россия*

<sup>2</sup> *Омский государственный университет, Омск, Россия*

<sup>3</sup> *Институт ядерных исследований НАН Украины, Киев, Украина*

**1. ВВЕДЕНИЕ**

Важным вопросом физики тяжелых ионов является теоретическое описание процессов, происходящих в ходе реакций слияния-деления, приводящих к синтезу тяжелых и сверхтяжелых элементов. О том, насколько близко понимание этих процессов к реальности, можно судить по способности теории предсказывать (объяснять) измеряемые в эксперименте величины.

В работе [1] было предложено разделить процесс слияния-деления на две стадии: приближение ядра снаряда к ядру мишени до того момента, когда их поверхности коснутся (эту стадию называем входным каналом реакции); эволюция системы (моносистемы), образовавшейся после касания ядер. Достоинство данной модели состоит в том, что на обеих стадиях процесса описание эволюции системы проводится в рамках единого подхода, предполагающего стохастический характер изменения степеней свободы системы.

В первоначальной модели [1] при описании входного канала деформационная энергия сталкивающихся ядер рассчитывалась в рамках модели жидкой капли (МЖК), то есть не учитывалась их оболочечная структура (ОС). В работе [2] было исследовано влияние учета ОС ядер, партнеров реакции, на процесс столкновения и, в конечном итоге, на характеристики системы в точке касания. Исследование было выполнено для реакций с участием ядер, имеющих в основном состоянии вытянутую ( $^{100}\text{Mo} + ^{100}\text{Mo} \Rightarrow ^{200}\text{Po}$ ) и сферическую ( $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{226}\text{Th}$ ) форму. Было показано, что учет ОС ядер сказывается на характеристиках системы в точке касания в обоих типах реакций.

В работах [1,2] при расчетах входного канала реакций предполагается, что ядра ориентированы «нос в нос», то есть оси симметрии ядер совпадают, что безусловно является упрощением реальной физической картины, позволяющим, однако, не прибегая к значительным усложнениям модели, провести расчеты, необходимые для оценки роли оболочечной структуры сталкивающихся ядер.

В данной работе показано, каким образом изменения характеристик системы в точке касания, вызванные учетом ОС во входном канале реакций, влияют на эволюцию моносистемы. Как и в работе [2] исследование было выполнено для реакций с участием ядер, имеющих в основном состоянии вытянутую и сферическую форму, но на более широком наборе ядер, а именно  $^{100}\text{Mo} + ^{100}\text{Mo} \Rightarrow ^{200}\text{Po}$ ,  $^{100}\text{Mo} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{210}\text{Ra}$ ,  $^{110}\text{Pd} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{220}\text{U}$  (вытянутые ядра) и  $^{16}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{224}\text{Th}$ ,  $^{48}\text{Ca} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{256}\text{No}$  (сферические ядра).

**2. МОДЕЛЬ**

Формы сталкивающихся ядер и форма моносистемы описываются с помощью параметризации, определенной в [3]. В этой параметризации используется лемнисткая система координат  $\{R, x\}$ , которая связана с цилиндрическими координатами  $\{\bar{\rho}, \bar{z}\}$ :

$$\begin{aligned} \bar{\rho} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{p - R^2(2x^2 - 1) - s}, & \bar{z} &= \frac{\text{sign}(x)}{\sqrt{2}} \sqrt{p + R^2(2x^2 - 1) + s}, \\ p^2 &\equiv R^4 + 2sR^2(2x^2 - 1) + s^2, & 0 \leq R \leq \infty, & \quad -1 \leq x \leq 1. \end{aligned} \quad (1)$$

Координатные поверхности лемнисткой системы координат  $R(x) = R_0$  являются овалами Кассини,  $s \equiv \varepsilon R_0^2$  – квадрат расстояния от фокусов овалов Кассини до начала координат. Сферическая форма ядер соответствует  $\varepsilon = 0$ , при больших значениях  $\varepsilon$  у ядра появляется шейка, которая уменьшается с увеличением  $\varepsilon$  и становится равной нулю при  $\varepsilon = 1$ .

Отклонение формы ядра от овалов Кассини описывается с помощью полиномов Лежандра:

$$R(x) = R_0 \left[ 1 + \sum_n \alpha_n P_n(x) \right], \quad (2)$$

где  $R_0 = r_0 A^{1/3}$  фм – радиус ядра, имеющего сферическую форму при том же объеме, а  $\alpha_n$  наряду с  $\varepsilon$  являются параметрами деформации. Для того, чтобы удовлетворить требованию сохранения объема ядра при деформации, вводится масштабный множитель:  $\bar{\rho} \rightarrow \rho \equiv \bar{\rho}/c, \bar{z} \rightarrow z \equiv \bar{z}/c, c = (V/V_0)^{1/3}$ , где  $V$  и  $V_0$  – соответственно объемы деформированного и сферического ядер.

Вместо  $\varepsilon$  оказывается удобным ввести новый параметр  $\alpha$ , который выбран таким образом, чтобы при  $\alpha = 1$  толщина шейки ядра равнялась нулю независимо от значений остальных параметров  $\alpha_n$ :

$$\varepsilon = \frac{\alpha - 1}{4} \left[ \left( 1 + \sum_n \alpha_n \right)^2 + \left( 1 + \sum_n (-1)^n \alpha_n \right)^2 \right] + \frac{\alpha + 1}{2} \left[ 1 + \sum_n (-1)^n \alpha_{2n} (2n - 1)!! / (2^n n!) \right]^2. \quad (3)$$

Динамика коллективных переменных описывается уравнениями Ланжевена:

$$\frac{dq_\beta}{dt} = \mu_{\beta\nu} p_\nu, \quad \frac{dp_\beta}{dt} = - \left[ \frac{\partial V_{pot}(r, \vec{\alpha})}{\partial q_\beta} + \frac{1}{2} p_\nu p_\eta \frac{\partial \mu_{\nu\eta}}{\partial q_\beta} + \gamma_{\beta\nu} \mu_{\nu\eta} p_\eta \right] + \xi_r(t). \quad (4)$$

Здесь  $q_\beta$  – набор деформационных параметров системы,  $p_\beta$  – набор соответствующих им импульсов,  $V_{pot}$  – потенциальная энергия системы,  $\mu_{\beta\nu}$  – тензор обратный тензору инерции,  $\gamma_{\beta\nu}$  – фрикционный тензор,  $\xi_r(t)$  – случайная сила, по повторяющимся индексам подразумевается суммирование.

Как при описании входного канала, так и при описании эволюции моносистемы, необходимо знать потенциальную (деформационную) энергию каждого из ядер ( $E_{def}^{(m,t,p)}$ ), а также их инерционные ( $m_{\beta\nu}^{(m,t,p)}$ ) и фрикционные ( $\gamma_{\beta\nu}^{(m,t,p)}$ ) тензоры, где индексы  $m$ ,  $t$  и  $p$ , обозначают соответственно моносистему, ядро «мишень» и ядро «снаряд».

Потенциальная энергия ядер рассчитывалась в макроскопической-микроскопической модели. В этой модели энергия деформации ядра представляется как сумма макроскопической части и оболочечной поправки (включающей поправку к энергии спаривания):  $E_{def}^{(m,t,p)} = E_{def}^{LDM} + E_{shell}$ . В качестве макроскопической нами использована МЖК с параметрами из работы [4]. Зависящая от температуры ([5]) оболочечная поправка рассчитывается по методу Струтинского [6].

Для расчета фрикционного и инерционного тензоров ядер используется подход, основанный на применении теории линейного отклика и локального гармонического приближения [7].

### 2.1. Входной канал

Во входном канале мы имеем дело с системой состоящей из слабо деформированных ядер, находящихся на некотором расстоянии друг от друга. Если считать, что ядра ориентированы «нос к носу», то есть их оси симметрии совпадают, то для описания формы системы во входном канале достаточно набора из трех параметров ( $r, \alpha_t, \alpha_p$ ).

Параметр  $r$  описывает расстояние между центрами масс ядер, параметры  $\alpha_t$  и  $\alpha_p$  описывают деформации ядер «мишени» и «снаряда» соответственно.

Для определения потенциальной энергии системы наряду с ее вращательной энергией и деформационной энергией каждого из ядер необходимо учесть также ядерное и кулоновское взаимодействие между ядрами:

$$V^{fus} = V_{rot}^{fus} + E_{def}^t + E_{def}^p + V_{GK} + V_{coul}.$$

Здесь  $V_{rot}^{fus} = \frac{\hbar^2 L^2}{2(Mr^2 + J_t + J_p)}$  – вращательная энергия системы ( $J_i$  – твердотельные моменты инерции

каждого из ядер,  $M$  – приведенная масса системы). Для описания ядерного взаимодействия  $V_{GK}$  мы использовали модификацию потенциала Гросса-Калиновского [8], введенного для описания взаимодействия между сферическими ядрами, предложенную в статье [9], и применимую к деформированным ядрам.

Для описания трения между ядрами использовалось предположение о поверхностной природе ядерного трения [9]. Инерционный тензор является диагональным:  $m_{rr}^{fus} = M$ ,  $m_{\alpha_t \alpha_t}^{fus} = m_{\alpha_t \alpha_t}$ ,  $m_{\alpha_p \alpha_p}^{fus} = m_{\alpha_p \alpha_p}$ .

При проведении «жидкокапельных» расчетов входного канала потенциальная энергия каждого из ядер рассчитывалась в МЖК, фрикционные параметры рассчитываются по так называемой «wall»-формуле, а инерционные – по методу Вернера-Уиллера, аналогично тому, как это было сделано в [1].

Интегрирование уравнений Ланжевена во входном канале производится с расстояния  $r_{in} = 4R_{touch}$ , до тех пор, пока ядра не достигнут точки касания  $R_{touch} = R_t + R_p + (a_{d,t} + a_{d,p})/2$  ( $R_i$  – расстояние от центра масс соответствующего ядра, до его поверхности вдоль линии, соединяющей центры масс взаимодействующих ядер, последнее слагаемое учитывает диффузность ядерных поверхностей), либо, пока они не начнут разлетаться, так и не достигнув точки касания.

### 2.2. Эволюция моносистемы

Для того, чтобы, используя уравнения Ланжевена, начать вычисление эволюции коллективных степеней свободы системы на второй стадии расчетов, необходимо совершить переход от системы, состоящей из двух ядер, к моносистеме. Такие характеристики системы как угловой момент, ее внутренняя и потенциальная энергии определяются из распределений, полученных в результате расчета входного канала (рис. 3), по методу Неймана (метод «hit and miss»).

К сожалению, не получается однозначно связать параметры формы системы во входном канале с параметрами моносистемы, поэтому начальная форма моносистемы определяется из общих соображений. Параметр  $\alpha$  определяется условием, что система до и после перехода должна представлять собой два коснувшихся ядра, то есть



шейка, соединяющая две части системы, должна практически отсутствовать, это реализуется при значениях  $\alpha$ , близких к единице. Параметр  $\alpha_1$ , описывающий асимметрию системы, задается таким образом, чтобы отношение масс частей моносистемы было таким же, как отношение масс ядер, участвующих в реакции. Параметр  $\alpha_4$  определяется, исходя из условия, что потенциальная энергия системы при переходе не меняется. Для определения начальных импульсов необходимо из закона сохранения энергии определить кинетическую энергию коллективного движения, которая далее случайным образом распределяется по трем возможным степеням свободы, с тем ограничением, что импульс по  $\alpha$  должен быть направленным в сторону основного состояния системы.

Интегрирование уравнений Ланжевена производится до тех пор, пока система не поделится, либо пока она не сбросит избыточную энергию за счет испарения легких частиц и гамма-квантов [10] и не образует остаток испарения.

### 3. РЕЗУЛЬТАТЫ

Учет оболочечной структуры ядер приводит к существенным изменениям в деформационной зависимости их потенциальной энергии (рис. 1). Так на примере Mo видно, что учет ОС приводит к изменению начальной формы ядер, она становится вытянутой, это приводит к существенному снижению высоты потенциального барьера реакции (рис. 2), так как форма ядер на барьере сильно зависит от их начальной формы. Из рис. 2 видно, что барьер слияния в случае «жидкокапельных» расчетов (ядра имеют сферическую форму) примерно на 15 МэВ выше, чем в случае расчетов с учетом ОС.

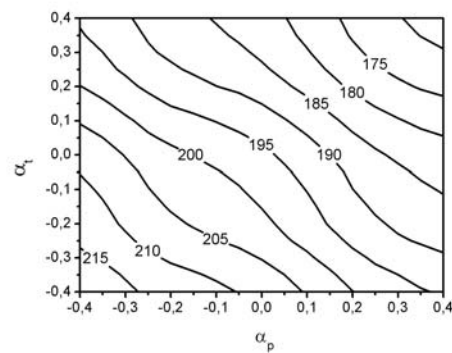
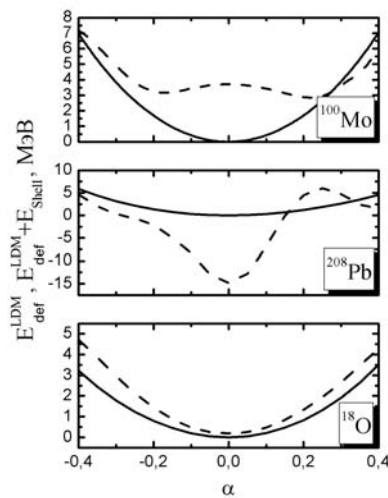


Рис. 1. Деформационная зависимость потенциальной энергии ядер  $^{100}\text{Mo}$ ,  $^{208}\text{Pb}$ ,  $^{18}\text{O}$ . Сплошная линия – «жидкокапельный» расчет, прерывистая – «оболочечный».

Рис. 2. Зависимость высоты барьера слияния от формы ядер  $^{100}\text{Mo}$ .

На примере ядер  $^{18}\text{O}$ ,  $^{208}\text{Pb}$  видно, что учет ОС приводит к увеличению жесткости ядерных потенциалов. Понятно, что в этом случае формы ядер в точке касания будут меньше отклоняться от сферических, чем в «жидкокапельных» расчетах. В то же время деформация ядер позволяет системе уменьшить свою потенциальную энергию, занять более выгодную конфигурацию. Соответственно, в расчетах с учетом ОС потенциальная энергия системы в точке касания получается выше, чем в «жидкокапельных» расчетах (рис. 3). Более того, увеличение жесткости ядерных потенциалов приводит к тому, что при расчетах с учетом ОС распределения событий касания по потенциальной и внутренней энергиям системы получаются уже, чем в случае «жидкокапельных» расчетов.

Результаты расчетов эволюции моносистемы представлены на рис. 4-6. Видно, что наши расчеты неплохо согласуются с экспериментальными данными, как в реакциях с вытянутыми ( $^{100}\text{Mo} + ^{100}\text{Mo} \Rightarrow ^{200}\text{Po}$ ,  $^{100}\text{Mo} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{210}\text{Ra}$ ,  $^{110}\text{Pd} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{220}\text{U}$ ), так и со сферическими ( $^{16}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{224}\text{Th}$ ,  $^{48}\text{Ca} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{256}\text{No}$ ) в основном состоянии ядрами. На рис. 4 для сравнения также приведены теоретические оценки, полученные в модели конкуренции каналов полного слияния и квазиделения в симметричных ядерных реакциях [11]. Видно, что нам удалось точнее воспроизвести сечения при низких энергиях, а вот спад сечения при высоких энергиях в реакции  $^{100}\text{Mo} + ^{100}\text{Mo} \Rightarrow ^{200}\text{Po}$  в нашей модели, в отличие от модели [11], описать не получилось.

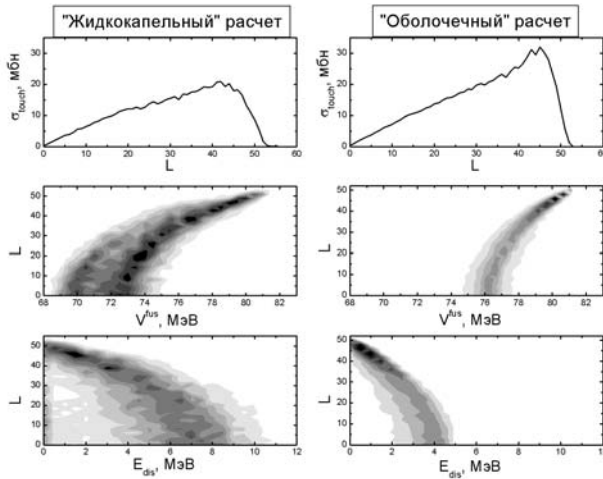


Рис. 3. Характеристики системы  $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{226}\text{Th}$  в точке касания ( $E_{cm} = 82$  МэВ).

Панели: верхние – зависимость величины сечения касания от углового момента системы; центральные – распределение событий касания по потенциальной энергии системы и ее угловому моменту; нижние – распределение событий касания по внутренней энергии системы и ее угловому моменту

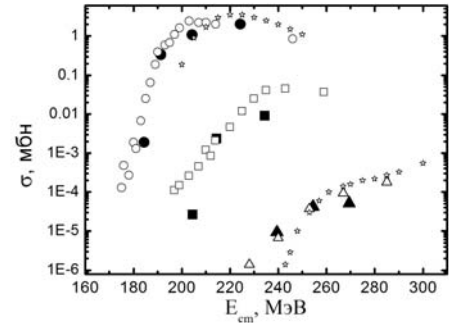


Рис. 4. Сечения образования остатков испарения в реакциях  $^{100}\text{Mo} + ^{100}\text{Mo} \Rightarrow ^{200}\text{Po}$  (круги),  $^{100}\text{Mo} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{210}\text{Ra}$  (квадраты),  $^{110}\text{Pd} + ^{110}\text{Pd} \Rightarrow ^{220}\text{U}$  (треугольники) (черные точки – результаты расчетов, открытые символы – экспериментальные данные). Звездочки – расчет в модели [11], экспериментальные данные взяты из работы [12].

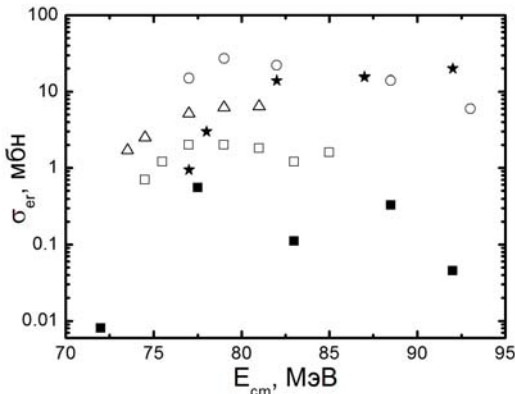


Рис. 5. Сечения образования остатков испарения. Символы: черные квадраты – расчет реакции  $^{18}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{226}\text{Th}$  в модели [1]; черные круги – наш расчет реакции  $^{16}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{226}\text{Th}$ ; открытые квадраты [13], треугольники [14], круги [15] – экспериментальные данные по реакции  $^{16}\text{O} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{226}\text{Th}$ .

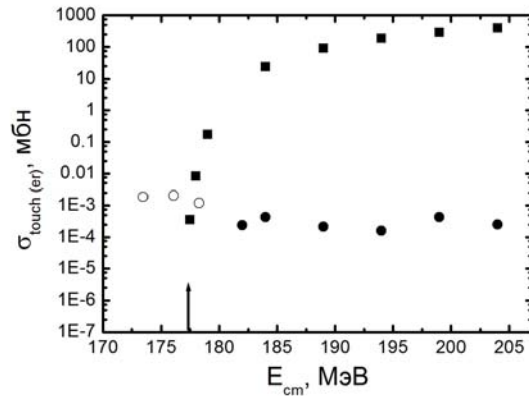


Рис. 6. Реакция  $^{48}\text{Ca} + ^{208}\text{Pb} \Rightarrow ^{256}\text{No}$ . Сечения касания (черные квадраты – наш расчет), и сечения образования остатков испарения (черные круги – наш расчет, открытые круги – экспериментальные данные [16]). Стрелка показывает положение барьера слияния.

#### 4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В нашей модели был проведен учет ОС сталкивающихся ядер, что позволило улучшить согласие результатов расчетов с экспериментальным данным, как в реакциях с вытянутыми (рис. 4), так и в реакциях со сферическими (рис.5, 6) ядрами.

#### REFERENCES

1. Kosenko G. I., Ivanyuk F. A., and Pashkevich V. V. The Multi-dimensional Langevin Approach to the Description of Fusion-fission Reactions // JNRS (Japan) – 2002. - Vol. 3. - (2002) – P. 71-76.
2. В. Л. Литневский, Г. И. Косенко, Ф. А. Иванюк, В. В. Пашкевич, Учет оболочечной структуры сталкивающихся ядер в процессе слияния-деления // ЯФ – 2011.- Vol. 74. – P. 1029-1037.
3. V.V. Pashkevich, On the asymmetric deformation of fissioning nuclei // Nucl.Phys. – 1971. – Vol. A169. – P. 275-293.
4. W. D. Myers and W. J. Swiatecki, Anomalies in nuclear masses // Ark. Fys. – 1967.- Vol. 36. – P. 343-352.
5. А. В. Игнатюк, Г. Н. Смиренин, А. С. Тишин, Феноменологическое описание энергетической зависимости параметра плотности уровней // ЯФ – 1975.- Vol. 21. – P. 485-490.

6. Brack M. et al., Funny Hills: The Shell-Correction Approach to Nuclear Shell Effects and Its Applications to the Fission Process // Rev. Mod. Phys. – 1972. – Vol. 44. – P. 320 – 405.
7. Ivanyuk F. A. and Hofmann H. Pairing and shell effects in the transport coefficients of collective motion // Nucl. Phys. – 1999. – Vol. A657. – P. 19-58.
8. Gross D.H.E., and Kalinowski H. Friction Model of Heavy Ion Collision // Phys. Rep. – 1978. – Vol. 45. – P. 175 - 210.
9. Fröbrich P. Fusion and Capture of Heavy Ions above the Barrier: Analysis of Experimental Data with the Surface Friction Model // Phys. Rep. – 1984. - Vol. 116. – P. 337 - 400.
10. Ijtinov A.S. et al. Phenomenological statistical analysis of level densities, decay widths and lifetimes of excited nuclei // Nucl.Phys. – 1992. - Vol. A543. – P. 517-557.
11. N. V. Antonenko et al. Compound nucleus formation in reactions between massive nuclei: Fusion barrier // Phys. Rev. – 1995. - Vol. C51. – P. 2635-2646.
12. W. Morawek et al. Breakdown of the compound-nucleus model in the fusion-evaporation process for  $^{110}\text{Pd} + ^{110}\text{Pd}$  // Z. Phys. – 1991. - Vol. A341. – P. 75-78.
13. E. Vulgaris, L. Grodzins, S. G. Steadman, and R. Ledoux, Fusion, transfer, and elastic scattering at sub-barrier energies for  $^{16,18}\text{O}$  ions on  $^{208}\text{Pb}$  and  $^{15}\text{N}$  and  $^{16}\text{O}$  ions on  $^{209}\text{Bi}$  // Phys. Rev. – 1986. - Vol. C33. – P. 2017-2027.
14. K. Hartel, Ph.D. thesis, Technical University, Munich, 1985.
15. K.-T. Brinkmann et al. Residue excitation functions from complete fusion of  $^{16}\text{O}$  with  $^{197}\text{Au}$  and  $^{208}\text{Pb}$  Phys. Rev. – 1994. - Vol. C50. – P. 309-316.
16. Yu. Ts. Oganessian et al. Measurements of cross sections for the fusion-evaporation reactions  $^{204,206,207,208}\text{Pb} + ^{48}\text{Ca}$  and  $^{207}\text{Pb} + ^{34}\text{S}$ : Decay properties of the even-even nuclides  $^{238}\text{Cf}$  and  $^{250}\text{No}$  // Phys. Rev. – 2001. - Vol. C64. – P. 054606-1-054606-8.

## **ЭВОЛЮЦИЯ ВОЗБУЖДЕННОГО ФАЙЕРБОЛЛА ВО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ ИОНОВ Au и Pb С ТЯЖЕЛЫМИ ЯДРАМИ ЭМУЛЬСИИ ПРИ ЭНЕРГИЯХ AGS и SPS УСКОРИТЕЛЕЙ**

А.Х. Аргынова, А.Ш. Гайтинов, А.А. Локтионов, В.И. Скоробогатова, П.Б. Харчевников  
*Физико-технический Институт, Алматы, Казахстан*

### **1. Проблемы деконфайнмента адронов в соударениях тяжелых ионов**

Актуальность современных проблем релятивистской ядерной физики определяется исключительной важностью задач поиска и анализа фазового перехода вещества из адронного состояния в кварк-глюонную плазму. Традиционная, - до недавнего времени, - точка зрения в этом направлении исследований состояла в том, что фазовый переход с деконфайнментом адронов произойдет в соударениях тяжелых ядер при высоких энергиях [1], создающих наилучшие условия высоких давлений и температур в объеме реакции. Широкие программы международных исследований, выполненные в Объединенном институте ядерных исследований – (ОИЯИ, Дубна) [2], в Брукгейвской национальной лаборатории – (БНЛ, США) [3] и в Европейском центре ядерных исследований - (ЦЕРН, Женева) [4], существенно развили и улучшили понимание проблем множественной генерации частиц во взаимодействиях ядер. Современная картина (рис.1) основных этапов формирования и распада возбужденного файерболла [5] включает начальную стадию взаимодействий, определяющуюся партоным состоянием сталкивающихся ядер, образование кварк-глюонной плазмы и смешанной фазы адронной материи, последующие стадии вымораживания, на которых образуются экспериментально наблюдаемые частицы.

Международные эксперименты второго поколения на коллайдере RHIC (БНЛ, Au+Au, 56, 130 и 200 А ГэВ, 2000 – 2005гг.) [6] и ускорительном комплексе SPS (ЦЕРН, эксперимент NA 61) [7] развили исследования, начатые на установке AGS и в эксперименте NA 49 [8], и позволили получить качественно новые результаты по коллективным процессам в проблемах взаимодействия ядер.

Новый взгляд на проблему был достигнут в теоретических исследованиях (ОИЯИ) последнего пятилетия [9], в которых было показано, что «смешанная фаза возбужденной адронной материи», включающей как свободные кварки и глюоны, так и протоны с нейтронами, с наибольшей вероятностью реализуется при сравнительно низких энергиях, в интервале от 4 до 9 ГэВ на нуклон в системе центра масс. Соответственно эксперименты на RHIC были переориентированы в проект RHIC II [10] на интервал меньших энергий в районе первых десятков ГэВ.

Решения проблем адронных фазовых переходов становятся главными задачами для экспериментов третьего поколения (~2015г.). С этой целью «сканирование» параметров процессов множественного рождения по энергиям и геометрическим параметрам столкновений ядер планируется выполнить в ОИЯИ на новом коллайдере NICA - Nuclotron-based Ion Collider fAcility [11]. Решение аналогичной задачи готовится в немецком GSI-центре (Дармштадт) в эксперименте с фиксированной мишенью FAIR - Facility for Anti-protons and Ion Research [12].

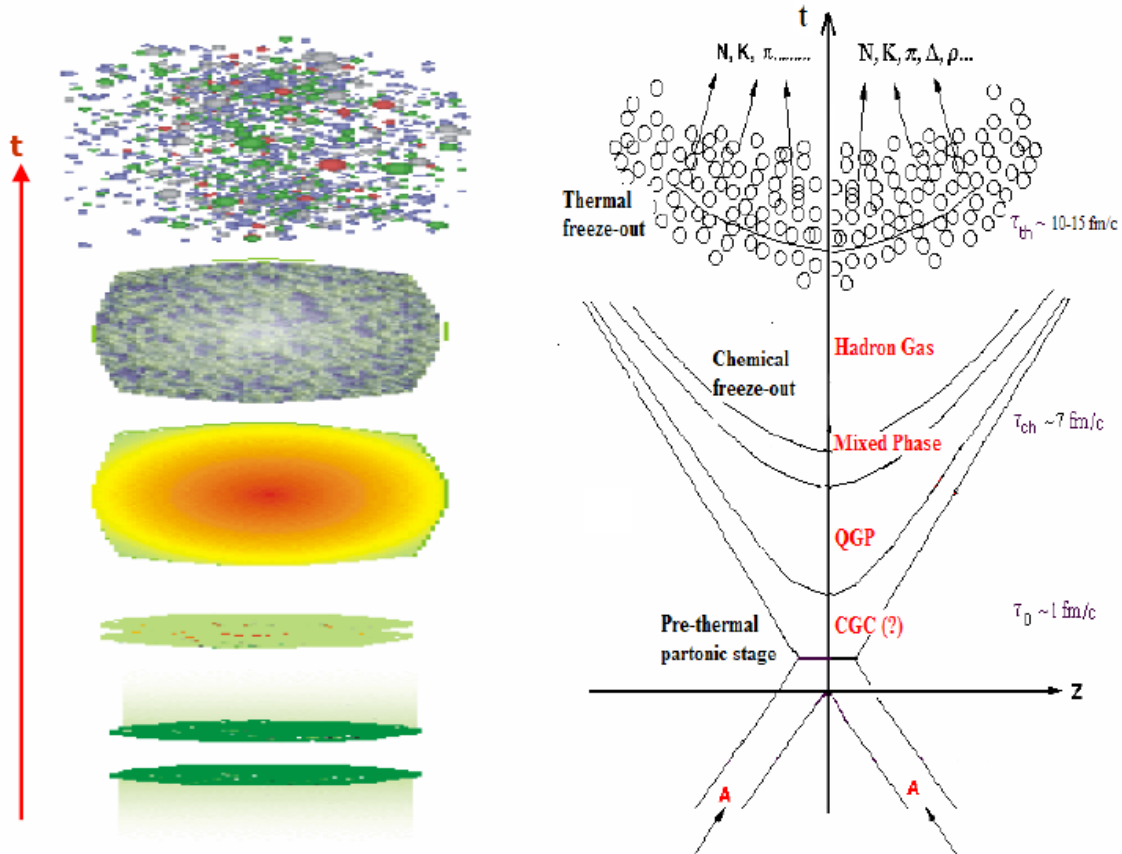


Рисунок 1 – Наглядная – (слева) и пространственно-временная – (справа) схемы эволюции возбужденного файерболла во взаимодействиях тяжелых ядер.

## 2. Анализ взаимодействий ионов Au и Pb с тяжелыми ядрами эмульсии

В настоящей работе исследована энергетическая зависимость эволюции возбужденного файерболла. Сравнительный анализ взаимодействий ядер золота *Au* и свинца *Pb* с тяжелыми ядрами эмульсии *Ag* или *Br* при энергиях 10.7 А ГэВ и 158 А ГэВ выполнен основе анализа данных экспериментов AGS и SPS. Метод ядерных эмульсий позволил с высокой точностью оценить основные экспериментально наблюдаемые параметры взаимодействий: множественность – число рожденных релятивистских частиц в каждом событии (в основном пионов) и псевдобыстроты:

$$\eta = - \ln \operatorname{tg} \theta / 2,$$

где  $\theta$  - пространственный угол вылета соответствующего трека.

Основные этапы анализа состояли [13] в:

1. Разделении всех взаимодействий ядер на группы с определенной степенью центральности соударений, от наиболее центральных до периферических,
2. Исследовании флуктуаций наблюдаемых величин в отдельных событиях: множественности, псевдобыстроты и плотности энергии, выделившейся в событии, пропорциональной  $dN/d\eta|_{\eta=0}$ .
3. Исследовании флуктуаций множественности «вперед-назад» в СЦМ, ответственных за начальные этапы эволюции файерболла,
4. Исследовании сильных динамических флуктуаций над пуассоновским фоном, определяющих тип распада файерболла.

В качестве первого приближения для оценки флуктуаций множественности «вперед-назад» в СЦМ в настоящей работе рассчитывались величины асимметрии и эксцесса псевдобыстротных распределений в отдельных событиях. Оценка сильных динамических флуктуаций множественности над пуассоновским фоном была выполнена на основе метода факториальных моментов [13]. В процессах взрывного распада возбужденного файерболла, при которых происходит коллективный разлет вторичных частиц с высокой средней множественностью, нормированные факториальные моменты  $\langle F_q(\delta) \rangle$  не зависят от размера бина  $\delta$  на последовательности все уменьшающихся элементов фазового пространства:

$$\langle F_q(\delta) \rangle \sim \text{Const}$$

Процессам каскадного распада файерболла соответствует противоположное поведение  $\langle F_q \rangle$  - степенная зависимость от размера бина  $\delta$  при  $\delta \rightarrow 0$ :

$$\langle F_q(\delta) \rangle \sim (1/\delta)^{\varphi_q}$$

взаимодействий ядер  $Au$  с ядрами  $Ag$  или  $Br$  и выполнение нового анализа по флуктуациям множественности «вперед-назад» в СЦМ и сильным динамическим флуктуациям позволило получить физически более ясное представление о процессах множественной генерации частиц при этих энергиях. Сумма результатов анализа распределений по множественности, псевдобыстротам, флуктуациям асимметрии и эксцесса псевдобыстротных распределений в отдельных событиях и сильным динамическим флуктуациям над пуассоновским фоном представлена на рис. 2.

**3. Анализ динамических флуктуаций во взаимодействиях  $Au - Ag/Br$**

Эксперимент по изучению взаимодействий ядер золота  $Au$  с энергией 10,7 А·ГэВ с ядрами эмульсии  $Ag$  или  $Br$ , полученных на ускорительном комплексе Alternating Gradient Synchrotron – AGS в Брукхейвенской национальной лаборатории – (БНЛ, США), был выполнен коллаборацией EMU 01 [14]. Выделение в настоящей работе центральных

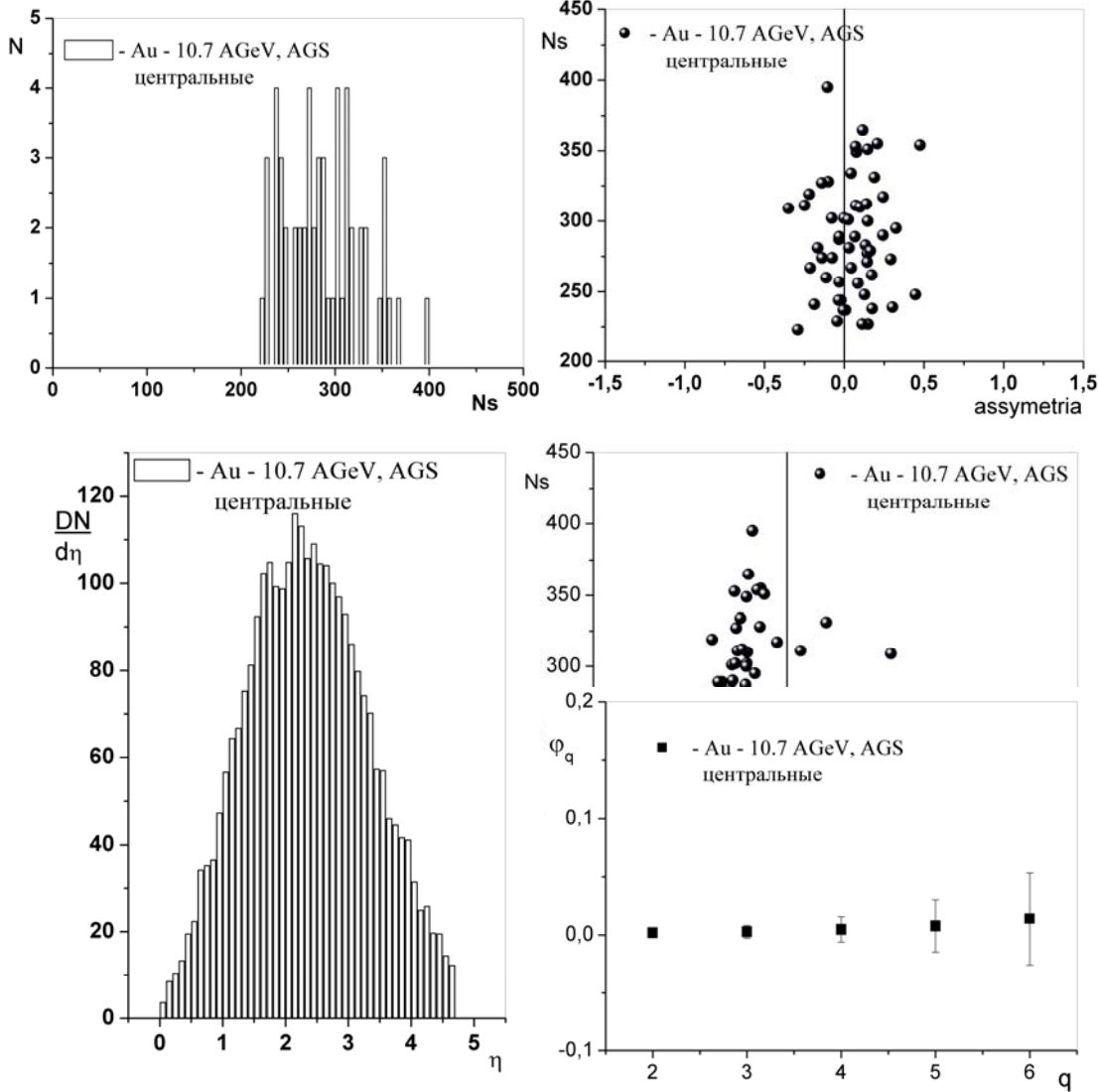


Рисунок 2 – Характеристики множественных процессов в центральных взаимодействиях ядер золота  $Au - 10,7$  А·ГэВ с ядрами эмульсии  $Ag$  или  $Br$  при энергиях 10,7 А·ГэВ.

**4. Анализ динамических флуктуаций во взаимодействиях  $Pb - Ag/Br$**

Экспериментальное изучение процессов множественной генерации частиц во взаимодействиях ядер свинца  $Pb$  с первичной энергией 158 А·ГэВ на ускорительном комплексе Super Proton Synchrotron – SPS было выполнено коллаборацией EMU 12 [15]. Наш анализ взаимодействий ядер свинца  $Pb$  с первичной энергией 158 А·ГэВ проводился точно также, как и ядер золота при энергии 10,7 А·ГэВ. Результаты соответственно представлены на рис. 3.

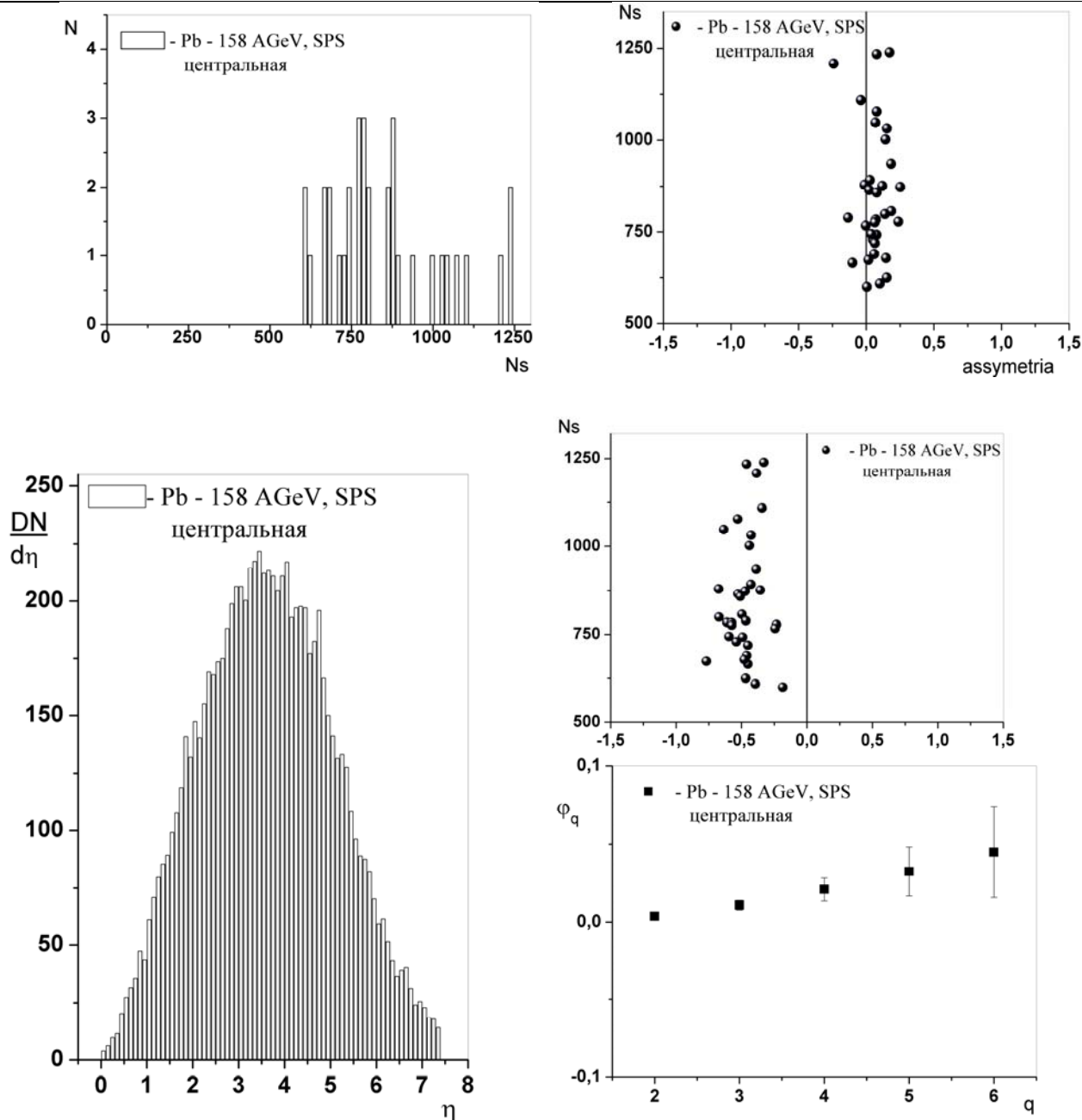


Рисунок 3 – Характеристики центральных взаимодействий ядер свинца  $Pb - 158 \text{ A-ГэВ}$ .

### 5. Выводы

Результаты сравнительного анализа центральных и периферических взаимодействий тяжелых ядер  $Au$  и  $Pb$  с тяжелыми ядрами эмульсии  $AgBr$  при существенном, - пятнадцатикратном, - изменении энергии первичных ядер от 10.7 до 158 А ГэВ приведены в таблице. Изучение этих характеристик позволяет сделать следующие выводы:

В обоих экспериментах центральные взаимодействия характеризуются высокой мно-жественностью событий и высокой плотностью энергии, величина которой пропорциональна  $dN/d\eta|_{\eta=0}$ .

Оба эксперимента характеризуются сильными флуктуациями асимметрии и эксцесса псевдобыстротных распределений в отдельных событиях, с существенным отклонением от гауссиана. Флуктуации существенно выше для центральных взаимодействий ядер  $Au$  в эксперименте AGS по сравнению со взаимодействиями ядер  $Pb$  в эксперименте SPS: Флуктуации величин асимметрии больше в два раза, а флуктуации величин эксцесса – в три раза.

Следует подчеркнуть, что нарастание флуктуаций множественности «вперед-назад» в СЦМ ожидается вблизи района фазового перехода вещества из адронного состояния в кварк-глюонную плазму. Это как раз район энергии “дубненской поляны”, в которую попадает эксперимент AGS. Напротив, эксперимент SPS выходит далеко за этот энергетический интервал.

Оба эксперимента характеризуются коллективным типом распада файерболла на наблюдаемые частицы. Только для периферических взаимодействий ядер  $Au$  с существенно меньшей плотностью энергии наблюдается слабая составляющая каскадного процесса распада.

Таблица

Экспер	Тип взаимодействия	Переменные			Динамич флукт. над Пуассон. фоном
		Средняя множест событий	$\frac{DN}{d\eta} _{\eta=0}$	$\langle \text{Асим.} \rangle$ $\langle \text{Эксц.} \rangle$ по распределениям в отдельных событиях	Характер распада файерболла
Au - AgBr 10.7 А ГэВ AGS	центральные полуцентр полупериф периферич	288 ± 41	115	0.05 ± 0.2 – 0.4 ± 0.3	Коллективн коллективн коллективн коллек+каска
		227 ± 35	85	0.08 ± 0.2 – 0.4 ± 0.2	
		128 ± 41	45	0.03 ± 0.2 – 0.6 ± 0.3	
		58 ± 25	18	0.008 ± 0.2 – 0.8 ± 0.4	
Pb - AgBr 158 А ГэВ SPS	центральные периферич	849 ± 174	222	0.07 ± 0.1 – 0.5 ± 0.1	коллективн коллективн
		298 ± 137	70	0.15 ± 0.2 – 0.5 ± 0.3	

**Литература**

1. H. Satz, The Quark-Gluon plazma, arXiv: 1101.3937 (hep-ph)
2. А.Н. Сисакян, Некоторые проблемы релятивистской ядерной физики и множественного рождения частиц, ОИЯИ 2006, [www1.jinr.ru/Books/sisakian06.pdf](http://www1.jinr.ru/Books/sisakian06.pdf)
3. BNL Informal report, AGS experiments 1996-1999, Brookhaven, 1999
4. ISMD 2007: NA 49 results from Pb+Pb collisions at CERN SPS
5. А.С. Сорин, Физика тяжелых ионов высоких энергий и проект NICA. Современные ускорительные технологии в релятивистской ядерной физике, Дубна, 21.04.2011.
6. Hunting the Quark Gluon Plasma, Results from the first 3 years at RHIC, April 18, 2005, Report BNL-73847-2005, 361 p.
7. M. Gazdzicki et al., Study of hadron production in hadron-nucleus and nucleus-nucleus collisions at CERN SPS, CERN, SPS, 03 Nov, 2006.
8. K. Grebieszko et al., NA 49 results from Pb+Pb collisions at CERN SPS, ISMD 2007, Berkeley, USA, Aug 4-9, 2007.
9. D. Blachke, A.N. Sisakian, A.S. Sorin, Status of NICA project at JINR, Brookhaven, June 12, 2009.
10. G. Stephans, The RHIC Low Energy Program, arXiv: 0607030
11. <http://nica.jinr.ru>
12. [www.helmholtz.de/en/research/eu-projects/.../fair/](http://www.helmholtz.de/en/research/eu-projects/.../fair/)
13. А.Х. Аргынова, А.Ш. Гайтинов, А.А. Локтионов и др., Множественные процессы во взаимодействиях ядер высоких энергий, Сб. трудов 6-ой Международн. Научной Конференции «Современные достижения физики и физическое образование», Алматы, КазНУ, 2009, с 140-141.
14. Э.А. Де Вольф, И.М. Дремин, В. Киттель, Поведение корреляций и флуктуаций в процессах рождения адронов при высоких энергиях, УФН, т.163, 1, 1-43, 1993.
15. A.Sh. Gaitionv et al., Proc of XVII Meeting of EMU 01 Collab, Dubna, 2000, p.143.
16. M.I. Adamovich et al., Eur Phys. J. A5 (1999) 429.



**BACKGROUND RADIATION DOSES OBTAINED FOR RESIDENTS IN FUKUSHIMA, JAPAN USING ESR SIGNALS IN TOOTH ENAMEL**

S. Toyoda<sup>1</sup>, A. Kondo<sup>1</sup>, K. Zumadilov<sup>2</sup>, M. Hoshi<sup>2</sup>, C. Miyazawa<sup>3</sup>

<sup>1</sup>*Department of Applied Physics, Okayama University of Science, Okayama, Japan*

<sup>2</sup>*Research Institute of Radiation Biology and Medicine, Hiroshima University, Hiroshima, Japan*

<sup>3</sup>*Department of Dentistry, Ohu University, Fukushima, Japan*

*The background doses for the teeth of residents of Fukushima Prefecture, Japan, before the nuclear power plant accidents in Mar. 2011, were obtained by electron spin resonance (ESR) method. The doses obtained from 77 of 92 samples are less than 100 mGy while the doses of the other samples are high up to 250 mGy. These background radiation doses given to tooth enamel have to be subtracted when the ESR dosimetry is applied to tooth enamel of Fukushima residents in order to obtain accidental radiation doses. Based on the correlation between the obtained radiation doses and the ages of the donors, the statistically significant critical level for Japanese residents were estimated for each age group.*

**Introduction**

Following the 2011 earthquake off the Pacific coast of Tohoku, four of Fukushima Dai-ichi nuclear power plants had accidents to release radioactive nuclei due to failure to cool the reactors and the spent nuclear fuels. A total of 1.5 PBq of radioactive nuclei (<sup>137</sup>Cs) was released into the environment causing evacuation of about 85,000 people.

Although the residents near the power plants were evacuated quite promptly and the dose rates at those residential areas were not critically high, there may be still possible demands of retrospective dosimetry from those evacuated residents and from the residents outside of the evacuation areas in Fukushima Prefecture. For such retrospective dosimetry for people who have not carried any dosimeters, measuring tooth enamel by ESR is a useful technique as teeth can be used as dosimeters, which will estimate individual doses of external radiation.

Accidental retrospective radiation doses are estimated by ESR by measuring the intensities of the radiation induced signal (RIS) in tooth enamel. This method has been applied to obtain the retrospective radiation doses given to human by various radiation accidents (e.g. Ikeya et al., 1984; Romanyukha et al., 1996; Chumak et al., 1999; Ivannikov et al., 2006; Shiraishi et al., 2002). The techniques have been improved as shown in the results of intercomparison studies (Chumak et al., 1996; Wieser et al., 2000, 2006; Hoshi et al., 2007; Ivannikov et al., 2007; Fattibene et al., in press). The lowest detectable dose was reported to be 29 mGy (Romanyukha et al., 2001).

When the method is applied to the present case of radiation accident with doses most probably as low as background doses, it is essential to measure the background doses measured by ESR in advance because accidental doses are obtained by subtracting the background doses from the measured doses. Unintentionally, such work was already done before the present accidents by Toyoda et al. (2011).

**Background doses of Fukushima residents**

According to Toyoda et al. (2011) in which the doses were obtained before Mar. 11, 2011 by ESR dosimetry for tooth enamel samples extracted from buccal and lingual halves of 47 teeth of residents of Fukushima Prefecture with age range of 20-70, most of the doses (77 of 92) are less than 100 mGy while the other samples show high doses up to 250 mGy. Although there is large variation in obtained dose, the highest or average dose increases with age. The natural background dose reported to be 4.1 μR/hr (Yamagata and Iwashima, 1967), corresponding to 0.33 mGy/yr, does not explain these results. As shown in Fig. 1, the slope of the line starting age of 14 (year of enamel formation, IAEA, 2002) best fit to the average value for each age group corresponds to a dose rate of 0.87 mGy/y. The difference between this dose rate and the natural dose rate may possibly be due to dental X ray examination as 70 % of the samples of buccal halves show values higher than lingual halves.

**The critical doses above which the accidental doses are detected**

Two cases were considered by Toyoda et al. (2011) to estimate the the critical doses above which the accidental doses are detected.

The first case is the statistically significant lowest dose obtained for a person. The critical doses ( $D_1$ ) for  $\alpha=5\%$  were calculated with the following formula,

$$D_1 = D_{av} + 1.96 \times D_{std} \tag{1}$$

where  $D_{av}$  is the averaged dose and  $D_{std}$  is the standard deviation.

The second case is when the doses are obtained for a group of 10 persons who have been exposed to a single dose by the accident. The critical averaged doses ( $D_2$ ) for  $\alpha=5\%$  were calculated with the following formula,

$$D_2 = D_{av} + 1.96 \times \sqrt{\frac{D_{std}^2}{n} + \frac{D_{s, std}^2}{10}} \tag{2}$$

where  $D_{av}$  is the averaged dose,  $D_{std}$  is the standard deviation,  $n$  is the number of samples, and  $D_{s, std}$  is the standard deviation of the dose for the exposed persons, currently assumed to be equal to  $D_{std}$ .

The calculated lowest critical doses for  $\alpha=5\%$  are shown in Fig. 2. The values are smaller than 100 mGy for younger age range while they increases with age up to around 200 mGy for a person and around 100 mGy for a group of 10 persons for those with ages of more than 50.

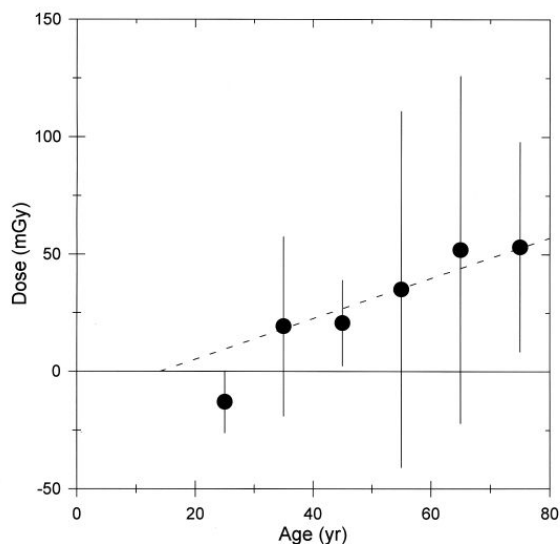


Fig. 1 The averaged lingual doses with standard deviations as a function of the ages of the donors (Toyoda et al., 2011).

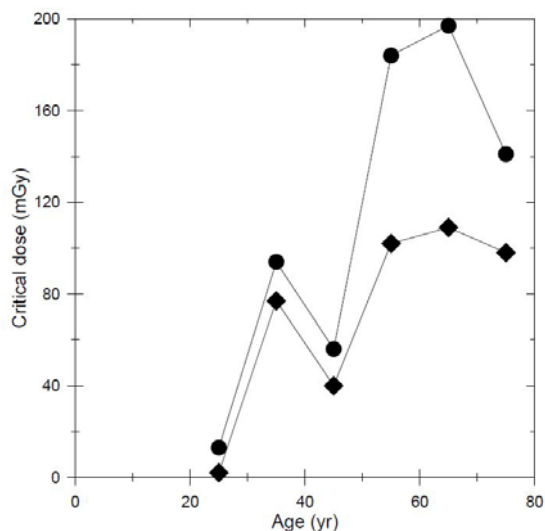


Fig. 2 The calculated critical doses for  $\alpha=5\%$  as a function of age ranges. Solid circles: for a person, solid diamonds: for a group of 10 persons.

## Summary

ESR retrospective dosimetry is useful to estimate individual doses given by radiation accidents. Estimation in advance of background doses is essential for such purpose to estimate those accidental doses. In the present case of Fukushima nuclear power plant accidents, Toyoda et al. (2011), unintentionally, had obtained such background doses which would be used to estimate the accidental doses of Fukushima residents when there are such demands although currently no residents are thought to have received such detectable doses.

## Acknowledgements

This study was supported by Okayama Foundation for Science and Technology and by Collaborative Research Project funded by Research Institute for Radiation Biology and Medicine, Hiroshima University.

## References

- Chumak, V., Bailiff, I., Baran, N., Bugai, A., Dubovsky, S., Fedosov, I., Finin, V., Haskell, E., Hayes, R., Ivannikov, A., Kenner, G., Kirillov, V., Khamidova, L., Kolesnik, S., Liidja, G., Likhtarev, I., Lippmaa, E., Maksimenko, V., Meijer, A., Minenko, V., Pasalskaya, L., Past, J., Puskar, J., Radchuk, V., Wieser, A., 1996. The first international intercomparison of EPR-dosimetry with teeth: first results. *Appl. Radiat. Isot.* 47, 1281-1286.
- Chumak, V., Sholom, S., Pasalkaya, L., 1999. Application of high precision EPR dosimetry with teeth for reconstruction of doses to Chernobyl populations. *Radiat. Prot. Dosim.*, 84, 515-520.
- Fattibene, P., Wieser, A., Adolfsson, E., Benevides, L. A., Brai, M., Callens, F., Chumak, V., Ciesielski, B., Della Monaca, S., Emerich, K., Gustafsson, H., Hirai, Y., Hoshi, M., Israelsson, A., Ivannikov, A. I., Ivanov, D., Kaminska, J., Ke, Wu, Lund, E., Marrale, M., Martens, L., Miyazawa, C., Nakamura, N., Panzer, W., Pivovarov, S., Reyes, R. A., Rodzi, M., Romanyukha, A. A., Rukhin, A., Sholom, S., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Swartz, H., Tarpan, M.A., Thierens, H., Toyoda, S., Trompier, F., Williams, B.B., Zhumadilov, K., submitted. The 4th International Comparison on EPR Dosimetry with Tooth Enamel: Part 1, Report on the results, *Radiat. Meas.*
- Hoshi, M., Toyoda, S., Ivannikov, A., Zhumadilov, K., Fukumura, A., Apsalikov, K., Zhumadilov, Zh. S., Bayankin, S., Chumak, V., Ciesielski, B., De Coste, V., Endo, S., Fattibene, P., Ivanov, D., Mitchell, C. A., Onori, S., Penkowski, M., Pivovarov, S. P., Romanyukha, A., Rukhin, A. B., Schultka, K., Seredavina, T. A., Sholom, S., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Tanaka, K., Trompier, F., Wieser, A., Wolakiewicz, G., 2007. Interlaboratory comparison of tooth enamel dosimetry on Semipalatinsk region: Part 1, general view. *Radiat. Meas.* 42, 1005-1014.
- IAEA, 2002. Use of electron paramagnetic resonance dosimetry with tooth enamel for retrospective dose assessment, IAEA-TECDOC-1331.
- Ikeya, M., Miyajima, J., Okajima, S., 1984. ESR dosimetry for atomic bomb survivors using shell buttons and tooth enamel. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 23, 697-699.
- Ivannikov, A. I., Toyoda, S., Hoshi, M., Zhumadilov, K., Fukumura, A., Apsalikov, K., Zhumadilov, Zh., Bayankin, S., Chumak, V., Ciesielski, B., Coste, V. De, Endo, S., Fattibene, P., Ivanov, D., Mitchell, C., Nalapko, M., Onori, S., Penkowski, M., Pivovarov, S., Romanyukha, A., Rukhin, A. B., Sanin, D., Schultka, K., Seredavina, T., Sholom, S., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Tanaka, K., Trompier, F., Wieser, A., Wolakiewicz, G., 2007. Interlaboratory comparison on tooth enamel dosimetry on Semipalatinsk region: Part 2, effects of spectra processing, *Radiat. Meas.*, 42, 1015-1020.
- Ivannikov, A., Zhumadilov, K., Tieliewuhan, E., Jiao, L., Zharlyganova, D., Apsalikov, K.N., Berekenova, G., Zhumadilov, Zh., Toyoda, Sh., Miyazawa, C., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Endo, S., Tanaka, K., Hoshi, M., 2006. Results of EPR dosimetry for population in the vicinity of the most contaminating radioactive fallout trace after the first nuclear test in the Semipalatinsk Test Site. *J. Radiat. Res.* 47, A39-A46.

- Romanyukha, A. A., Degteva, M.O., Kozheurov, V. P., Wieser, A., Ignatiev, E. A., Vorobiova, M. I., Jacob, P., 1996. Pilot study of the population of the Ural Region by EPR tooth dosimetry. *Radiat. Envir. Biophys.*, 35, 305–310.
- Romanyukha, A., A., Nagy, V., Slepchonok, O., Desrosiers, M. F., Jiang, J., and Heiss, A. (2001) Individual biodosimetry at the natural radiation background level. *Health Phys.*, 80, 71-73.
- Shiraishi, K., Iwasaki, M., Miyazawa, C., Yonehara, H., Matsumoto, M. (2002) Dose Estimation by ESR on Tooth Enamel from Two Workers Exposed to Radiation due to the JCO accident. 43:331-335.
- Toyoda S, Kondo A, Zumadilov K, Hoshi M, Miyazawa C, Ivannikov A, 2011. ESR measurements of background doses in teeth of Japanese residents, *Radiation Measurements*, 46, 797-800.
- Wieser A, Debuyst R, Fattibene P, Meghziene A, Onori S, Bayankin SN, Brik A, Bugay A, Chumak V, Ciesielski B, Hoshi M, Imata H, Ivannikov A, Ivanov D, Junczewska M, Miyazawa C, Penkowski M, Pivovarov P, Romanyukha A, Romanyukha L, Schauer D, Scherbina O, Schultka K, Sholom S, Skvortsov V, Stepanenko V, Thomas JA, Tielewuhun E, Toyoda S, Trompier F, 2006. The third international intercomparison on EPR tooth dosimetry: Part 2, final analysis, *Radiat. Protect. Dosim.*, 120, 176-183.
- Wieser, A., Mehta, K., Amira, S., Aragno, D., Bercea, S., Brik, A., Bugai, A., Callens, F., Chumak, V., Ciesielski, B., Debuyst, R., Dubovsky, S., Duliu, O.G., Fattibene, P., Haskell, E.H., Hayes, R.B., Ignatiev, E.A., Ivannikov, A., Kirillov, V., Kleschenko, E., Nakamura, N., Nather, M., Nowak, J., Onori, S., Pass, B., Pivovarov, S., Romanyukha, A., Scherbina, O., Shames, A.I., Sholom, S., Skvortsov, V., Stepanenko, V., Tikounov, D.D., Toyoda, S., 2000. The 2nd international intercomparison on EPR tooth dosimetry. *Radiat. Meas.* 32, 549-557.
- Yamagata N and Iwashima K, 1967. Terrestrial background radiation in Japan. *Health Phys.* 13, 1145-1148.

## CONFIGURATION AND CALIBRATION OF THE WHOLE-BODY COUNTER AT FORSCHUNGSZENTRUM JUELICH

Martin Schlaeger

*Forschungszentrum Juelich GmbH, Department of Safety and Radiation Protection, D-52425 Juelich, Germany*

### 1 Introduction

Whole-body counters are gamma-ray spectrometers used for the detection and quantitative measurement of radioactivity within the human body. This in vivo measuring technique is applicable to radionuclides emitting penetrating radiation, such as gamma rays, X-rays or bremsstrahlung produced by high-energy beta emitters. The detectors most commonly used in whole-body counters are semiconductor or scintillation detectors. Persons can be measured in a lying, sitting or standing position.

### 2 Configuration of the whole-body counter

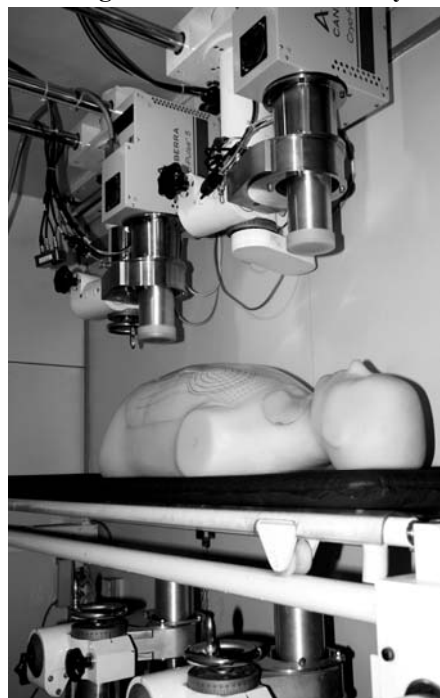


Figure 1: Whole-body counter at FZJ

The whole-body counter (WBC) at Forschungszentrum Jülich (Research Centre Jülich, FZJ) is equipped with four closed-end coaxial high-purity germanium (HPGe) detectors with carbon-epoxy windows. One is of the reverse-electrode (REGe) type (Canberra Model GR5522), and the others are extended range (XtRa) detectors with a thin contact on the front surface (Canberra GX6020). The relative efficiency of the detectors (compared to a 3 x 3 inch cylindrical NaI(Tl) detector) is in the range of 54 % to 62 %. Each detector is cooled down to  $-185^{\circ}\text{C}$  by an electrically refrigerated cryostat (Canberra Cryo-Pulse 5). Nuclear Instrument Modules (NIM) electronics is used: a high-voltage power supply, an amplifier and an analogue-to-digital converter (ADC) for each detector.

The detectors are installed in a fixed geometry within a shielded chamber with walls, ceiling and floor made of 15 cm low-activity steel and 3 mm lead as an inner lining to reduce the background radiation. During the measurement a person lies on a Plexiglas stretcher covered with a soft mattress. Two detectors are placed above and below the stretcher, respectively (Figure 1). The standard count time is 10 minutes. Data acquisition and analysis is controlled by the software packages Genie 2000 and Abacos (Canberra Industries).

Radionuclides such as Cs-137, K-40 and Co-60, which are distributed almost homogeneously in the body after intake, are measured by all four detectors (whole-body measurement). The four spectra are summed up after the measurement and the sum spectrum is analysed. Typical detection limits achievable with the whole-body counter are 27 Bq for Co-60 and 35 Bq for Cs-137. Radioisotopes of iodine are measured with only one detector positioned close to the thyroid gland, because iodine is concentrated in this organ (thyroid measurement, partial-body measurement). For example, the detection limit for I-131 in the thyroid is 6 Bq.

### 3 Efficiency calibrations

The efficiency  $\epsilon$  of a whole-body counter is the ratio of the number of detected photons (in the full-energy peak) to the number of photons emitted from the radiation source (a human body) during the same time period. The efficiency is needed to

calculate the activity of a radionuclide from a measured net peak area  $N_n$  in a spectrum. The activity  $A$  is inversely proportional to the efficiency  $\epsilon$ , the photon emission probability  $p_\gamma$  and the count time  $t$ :

$$A = \frac{N_n}{t \cdot \epsilon \cdot p_\gamma}$$

### 3.1 Conventional calibration

Generally efficiency calibrations for whole-body counters are performed by means of anthropomorphic phantoms containing known quantities of various gamma-emitting radionuclides, such as Co-60, Y-88, Cd-109, Sn-113, Ba-133, Cs-137 and Hg-203. In this conventional calibration method, gamma-ray spectra from phantom measurements are used to determine the full-energy peak efficiencies for all gamma energies of the radionuclide mixture. Finally, a calibration curve (full-energy peak efficiency versus photon energy) covering the whole energy range of interest is constructed by interpolation between the measured data points. Various physical phantoms are available for the efficiency calibration of WBCs, such as BOMAB (Bottle Manikin Absorber) and other bottle phantoms, the St Petersburg block phantom and the Fission-Product Phantom [1]. Simple bottle phantoms consist of 1 litre and 2 litre plastic bottles filled with an aqueous radionuclide solution. Varying numbers of bottles can be easily arranged in different ways to roughly represent human bodies with weight classes between 10 kg and 100 kg (Figure 2).



Figure 2: Simple bottle phantom

The more manlike reference male BOMAB phantom [2] consists of 10 plastic containers filled with a radioactive aqueous solution (Figure 3). The containers representing the arms, thighs, legs and neck are right circular cylinders, those for the head, thorax and abdomen are elliptical cylinders. The shells are made of high-density polyethylene (HDPE) with a density of 0.95 g/cm<sup>3</sup>; the wall thickness is 0.5 cm. Unfortunately BOMAB phantoms are commercially available only in a few weight classes.

St Petersburg block phantoms [3] (also called unified phantoms UP-02T, RISTH or Igor phantoms) were developed by the Research Institute of Sea Transport Hygiene, St Petersburg. Six versions (Figure 4) with nominal weights of 12, 24, 50, 70, 90 and 110 kg can be assembled from

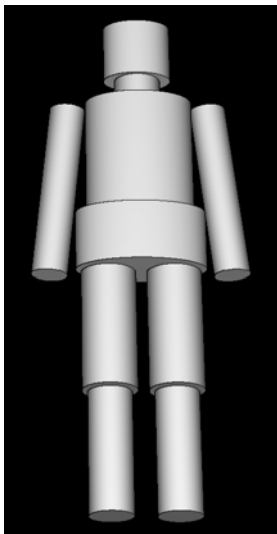


Figure 3: BOMAB phantom

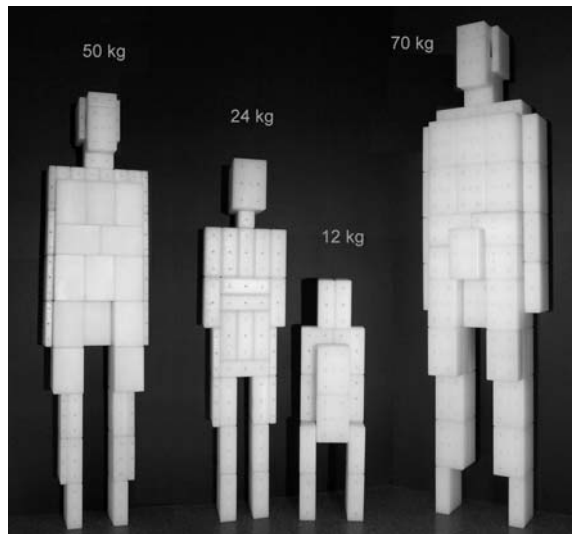


Figure 4: The four smallest versions of the St Petersburg phantom



Figure 5: Fission-Product Phantom

rectangular polyethylene blocks representing a body mass of 1 kg and 0.5 kg, respectively; their actual mass is 0.88 kg and 0.39 kg, respectively. Small plastic rods containing known amounts of radionuclides can be inserted into two holes drilled through the length of each block, resulting in a nearly homogeneous activity distribution within the phantom. The blocks are held together by aluminium connection pieces, so that the phantoms can be assembled in a lying, sitting or stand-up position.

A Fission-Product Phantom (Figure 5) is particularly useful to perform special organ calibrations which are required to measure radionuclides which are not homogeneously distributed in the body. The phantom contains a simulated rib cage and removable organs. Radioactivity can be added in the form of solutions to hollow organs (e. g. liver, kidneys) or in capsules fitted into holes located in the lungs. Various chest plate overlays provide representation of individuals with different chest wall thicknesses. The basic construction material is polyurethane with CaCO<sub>3</sub> added in the concentrations necessary for the simulation of different tissue types (muscle, adipose, cartilage, bone and lung tissue).

### 3.2 Mathematical calibration

In a mathematical calibration, the required efficiency values are simulated using Monte Carlo codes and mathematical phantoms (computational models) instead of deriving them from real measurements with physical phantoms. For these simulations, input files with a detailed model of all relevant components of the measuring system (detectors, phantoms and surrounding area) are needed; in order to obtain correct results, the model should describe the geometry and elemental composition of the measuring system as precisely as possible.

After a precise model of the detector system [4] had been designed and verified, a mathematical representation of the human body was needed for the simulation of whole-body counter measurements. In principle, many different types of mathematical anthropomorphic phantoms are suitable for this purpose. The simplest practical solution would be to create models of physical phantoms which are used in conventional calibrations, such as the BOMAB phantom or the St Petersburg phantom. Such primitive phantoms permit only a rough approximation of the human body because all internal details (organs, skeleton) are missing. On the other hand, there are very complex voxel phantoms [5] based on computed tomography (CT) or magnetic resonance imaging (MRI), which often comprise several million cells; their acquisition and handling is difficult.

For the calibration of the WBC in Juelich a decision was made in favour of MIRD (Medical Internal Radiation Dose) phantoms [6], which are simplified but still rather detailed representations of human bodies in various weight classes. Each

phantom consists of four sections (Figure 6): an elliptical cylinder capped by half an ellipsoid representing the head; a circular cylinder as neck; an elliptical cylinder representing the trunk and arms; two truncated circular cones representing the legs and feet. The surfaces of the skeleton and the internal organs are described by linear and quadratic inequations. Three tissue types are distinguished in the phantoms: skeletal, lung, and all other tissues with densities of 1.4, 0.296 and 1.04 g/cm<sup>3</sup>, respectively. The MIRD phantoms required for efficiency calibrations were created with the BodyBuilder software (WhiteRock Science). Because the phantoms were intended for the simulation of a nearly homogeneous activity distribution, only the skeleton and the lungs were explicitly specified inside the phantom; the space occupied by all other organs and tissues of the body was defined as soft tissue with a density of 1.04 g/cm<sup>3</sup>, which is a good approximation of muscle, fat and organ tissue. The radiation source was defined as a homogeneous activity distribution within the whole phantom except for the skeleton; this is a more or less realistic scenario for many radionuclides (e.g. K-40, Cs-137) which are not concentrated in a specific organ after intake.

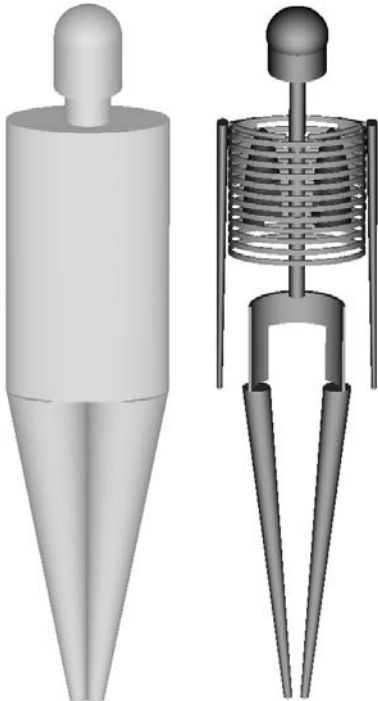


Figure 6: Surface (left) and inner structure (right) of a MIRD phantom

For Monte Carlo simulations versions 4C2 and 5 of the MCNP code (Monte Carlo N-Particle Transport Code) [7] were used. The software was run on a personal computer (Pentium 4 processor, 3.0 GHz, 1 GB RAM) under Windows XP. Efficiency values were calculated using the pulse height tally of MCNP. To keep the uncertainty of the calculation results lower than 1% the histories of up to 30 million particles had to be simulated in each case, depending on the gamma energy and the phantom size. The corresponding runtimes were between 1 and 2 hours for each efficiency value.

To perform a mathematical efficiency calibration of the whole-body counter for a wide range of phantom weights and photon energies, an input file was created for each required combination of phantom size and photon energy, and an MCNP run was started to simulate the gamma-ray spectrum for the corresponding whole-body counter measurement. The essential result of each run was the calculated full-energy peak efficiency for this measurement. Figure 7 shows the calculated efficiency curves in the interesting energy range 60 keV to 2000 keV for eight different phantoms representing adults and children of ‘normal build’ with the following sizes (weight/height): 14.7 kg/95 cm, 20.2 kg/111 cm, 30.0 kg/134 cm, 41.1 kg/150 cm, 49.7 kg/ 161 cm, 61.2 kg/171 cm, 74.7 kg/179 cm and 87.7 kg/190 cm.

### 3.3 Comparison of simulated and conventional calibration results

In order to assess the compatibility of simulated and experimental efficiency calibrations, calculated efficiency values from an MIRD phantom and measured values from a bottle phantom and a St Petersburg phantom were compared; all three phantoms represent a person with a weight of 70 kg and a height of 170 cm.

The maximum relative deviation between the simulated and the measured efficiencies is 13% for energies below 200 keV, 8% in the energy range 200 – 1000 keV, and 5% for photon energies greater than 1000 keV. In the whole energy range of interest, the simulated efficiency values are lower than the measured values from the bottle and block phantoms. Probably this

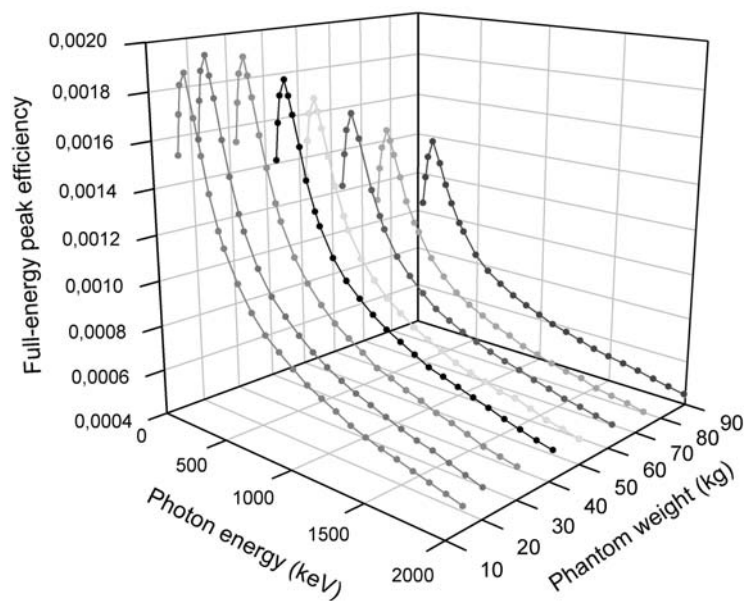


Figure 7: Simulated peak efficiency of the WBC as a function of phantom weight and photon energy

difference can be explained by a stronger self-absorption in the mathematical phantom due to the skeleton, which is not present in the physical phantoms. In addition to this effect there are large hollow spaces between the bottles in the bottle phantom which also reduce the self-absorption and thus increase the efficiency.

#### 4 Sensitivity analyses

In a sensitivity analysis simulations with MIRD phantoms were used to analyse the influence of possible sources of error on the accuracy of whole-body counting results. Most important in this regard is the positioning of the measured person or phantom and the detectors. As an example for a sensitivity analysis, Figure 8 shows the effect of incorrect detector positioning on the peak efficiency of the whole-body counter. A displacement of detector 1 (above the stretcher close to the head of the measured person) from its specified position towards the negative y- or z-axis increases the efficiency because the mean solid angle between the phantom and the detector is increased.

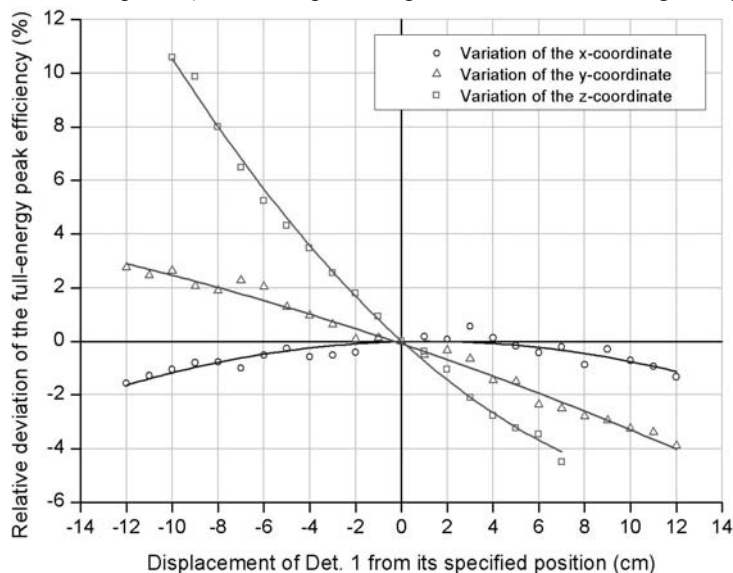


Figure 8: Variation of the WBC peak efficiency for 662 keV photons resulting from incorrect positioning of detector 1

A displacement towards the positive y- or z-axis or in any direction along the x-axis reduces the solid angle and thus the efficiency. The x-axis runs from the right edge to the left edge of the stretcher and the y-axis from the foot to the head of the stretcher. The z-axis is perpendicular to the stretcher plane with positive coordinate values above the stretcher.

#### 5 Conclusions

A mathematical calibration has many advantages and some disadvantages compared with the conventional method. First of all, a mathematical calibration does not require the expensive and time-consuming manufacture of radioactive phantoms and hence the handling of unsealed radioactive material and the disposal of radioactive waste can also be avoided. Only relatively few radionuclides suitable for the efficiency calibration of gamma-ray spectrometers are commercially available. For this reason the traditional calibration curves are mostly based on a small number of data points and the calculation of the required efficiency values by interpolation between these points can result in a considerable uncertainty in some energy ranges.

By contrast, in a mathematical calibration the efficiency for any desired photon energy can be simulated, regardless of the availability of appropriate radionuclides. The computational phantoms (e. g. MIRD and voxel phantoms) available for a mathematical calibration are more detailed and realistic than physical phantoms. An obvious disadvantage of a calibration procedure based on Monte Carlo simulations is the great expenditure for the creation of a precise geometrical detector model and its verification; a conventional calibration using radioactive reference materials can be performed without any information about the constructional features of the detector system.

A mathematical efficiency calibration of a whole-body counter by means of Monte Carlo simulations can be a useful alternative to conventional calibrations with phantoms containing radioactive reference sources. Both methods have various advantages and disadvantages and numerous sources of error; nevertheless the quality of a mathematical calibration is comparable to that of a conventional calibration provided that a precise model of the measuring system and an appropriate mathematical phantom are used.

#### 6 References

1. International Commission on Radiation Units and Measurements: Phantoms and Computational Models in Therapy, Diagnosis and Protection. ICRU Report 48 (1992).
2. American National Standards Institute: Specifications for the Bottle Manikin Absorption Phantom. American National Standard ANSI/HPS N13.35-1999 (1999).
3. Kovtun, A. N., Firsanov, V. B., Fominykh, V. I., Isaakyan, G. A.: Metrological parameters of the unified calibration whole-body phantom with gamma-emitting radionuclides. *Radiat. Prot. Dosim.* 89, 239 – 242 (2000).
4. Schläger, M.: Precise modelling of coaxial germanium detectors in preparation for a mathematical calibration. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A* 580, 137–140 (2007).
5. Petoussi-Henss, N., et al.: The GSF family of voxel phantoms, *Phys. Med. Biol.* 47, 89 – 106 (2002).
6. Cristy, M.: Mathematical phantoms representing children of various ages for use in estimates of internal dose. Oak Ridge National Laboratory, ORNL/NUREG/TM-367, NUREG/CR-1159 (1980).
7. X-5 Monte Carlo Team. MCNP – A General Monte Carlo N-Particle Transport Code, Version 5. Los Alamos National Laboratory, LA-UR-03-1987 (2003).



**DEVELOPMENT OF NEW GEOCEMENT BINDERS BASED ON NATURAL MINERALS OF ARMENIA AND TECHNOLOGY OF LRW CONDITIONING INTO ECOLOGICALLY SAFE COMPOUNDS**

G.M. Aleksanyan

*Yerevan State University, 1 Alex Manoogian Str., Yerevan, 0025, Republic of Armenia,  
Tel. (+37410) 55-91-36, E-mail: gurgenal@ysu.am or gurgenal@rambler.ru*

I have an objective to offer you a mutually interesting cooperation in the field of nuclear waste management areas.

I would like to inform you that for more than 8 years I (together with our scientific groups from Yerevan State University and Armenian NPP) have been cooperating with the leading organization (on the problems of purification of radioactive wastes of NPP and their conditioning into geocement bindings) in CIS - Federal State Unitary Enterprise "State Scientific Center of the Russian Federation - Institute for Physics and Power Engineering named after A.I. Leypunsky" (Russia), which for more than 20 years has been involved in the treatment and immobilization of radionuclides of the nuclear waste.

We have carried out the numerous proposals on the problems of the treatment and immobilization of radioactive wastes of nuclear power plants (Proposal A-1209 (Development of Geocement Binding Materials and technology of conditioning of radioactive absorbents and sludge by immobilization);

Proposal 3031 (Development of Technology for Conditioning Middle-active Liquid Wastes into Matrix);

Proposal 3760 (Immobilization of High-Level Wastes in Resistant Mineral-Like Materials in the Self-Propagating High Temperature Synthesis (SHS) Mode)).

Good results, that we obtained in the course of fulfilling the previous proposals, allowed us to think about the continuation of our studies. We have developed a new proposal - "**Development of New Geocement Binders Based on Natural Minerals of Armenia and Technology of LRW Conditioning into Ecologically Safe Compounds**".

This proposal corresponds closely to the aim and programs of International Atomic Energy Agency (IAEA). In particular, the safe storage of radioactive wastes from nuclear power plants (NPP) is a pressing world need.

This proposal will provide new technology on the utilization and safe storage of liquid radioactive waste. Specifically, natural, inexpensive, and stable minerals of Armenia, as well as stable industrial waste, will be used as components of geo-cement (geocement rock), for isolation of radionuclides from the biosphere for a period of over 300 years. This plan will contribute to an increase of radiation safety at the Armenian NPP as well as at those in other countries.

The authors of the proposed proposal plan to use the technology of energy-saving and environmentally sound (in contrast to vitrification or sintering which result in radioactive gas emission) and safe compacting of radionuclide loaded zeolites by means of using mainly geocements prepared on the base of inexpensive natural or technogenic alumosilicate materials..

As a result of the proposal implementation a technology will be developed typified by:

- low energy and material consumption, fewer number of stages, fire-safety, exclusion of the formation of secondary radioactive wastes with additional chemical toxicity; it is based on the use widely available natural and technology-generated materials; it will ensure incorporation of all radionuclides, organic and inorganic matter - CLRW components - into a water-stable isolating matrix with sufficient mechanical strength;

- resolving ecological problems by means of practical implementation inexpensive conditioning systems with a tangible economic benefit.

It is a considerable advantage of the technology developed that it can be used in other industries as well (e.g., chemical production) for management and disposition of wastes in the form of water solutions with high salt content, including toxic and hazardous chemical substances for solidification in water-stable compounds convenient for long-term storage at special sites for industrial wastes; this will diminish hazards of environmental contamination with chemicals and to reduce the expenses for their storage.

## **PROPOSAL INFORMATION**

### **Objectives**

The problem of radwaste management and disposition of radioactive wastes (RAW) is extremely topical nowadays all over the world; therefore, the work to ensure environmentally-friendly radioactive waste storage facility conditions is critical and cannot be delayed. For reducing the CRL (concentrated liquid radioactive waste) volume, a treatment of which is associated with significant technical and environmental problems it is expedient, namely, to carry out cleaning from radionuclides the LRW (liquid radioactive waste) at early stages of their formation.

**Objective of the proposal:** The development of the low resource- and energy-saving technology for the conditioning of liquid radioactive waste, particularly, by immobilization into geocement compound materials based on readily available and inexpensive natural and technogen radiative-steady materials of Armenia, development of the technical task and selection of the equipment of experimental - pilot installation applicable for the Armenian Nuclear Power Plant (ANPP).

### **Description of the Proposal**

A significant amount of the liquid radioactive waste (LRW) appears as a result of exploitation of nuclear power plants. In order to reduce its amount and provide a safe transient storing in the special storage (LWS), a practice of the LRW concentrating via distillation and evaporation is used, which yields mean-active, high salt containing liquid waste (CLW).

These wastes are characterized by the specific activity  $10^7 - 10^8$  Bq/l, which is mainly attributed to  $^{137}\text{Cs}$ , high content of the non-organic salts (nitrates, borates, phosphates, sodium and potassium carbonates, rare-earth elements, iron) - up to 300 – 400 g/land; high maintenance of organic substances (surface-active substances, synthetic detergents, oxalates, Trilon B, fats, soaps, industrial oils) up to 70 – 120 g/l.



The concentrated radioactive solutions are stored in the special containers for CLRW temporary storage, since a potential risk exists for their depressurization because of the materials corrosion resulting in environment radioactive pollution. The final stage of the LRW treatment is the solidification of the radioactive concentrates enabling their long-term storage or disposal.

Development of advanced universal waste reprocessing technologies and equipment, taking into account a treatment in stable hardened CLRW, accumulated in different countries over the entire period of nuclear industry operation and stored till now in a liquefied form in the surface repositories of the operating facilities, becomes very topical from the viewpoint of preserving the environment and preventing harmful impact of radioactive waste on human health and life.

For reducing the CRL volume, a treatment of which is associated with significant technical and environmental problems it is expedient, namely, to carry out cleaning from radionuclides the LRW at early stages of their formation.

#### **Suggestions put forward by the present authors.**

The subject of studies and investigations of the present proposal is the conditioning of the LRW, especially, radioactive sorbents, including the structure of zeolites on the basis of the granule of silica-alumina minerals.

The glassy materials proposed in the proposal will considerably expand the possibilities of application of geocement binding materials.

As a basis of the solidification process of LRW, particularly sorbents, is the cementing at normal temperature conditions. Various binding geocements and Portland-cements with admixtures will be tested. After detailed testing of the binders the priority binding material will be selected taking into account environmental, technological and economic factors.

The final product of the processing should be a homogeneous compound with uniformly distributed sorbent granules saturated with LRW...

The components of the binding geocement constitute the compound material permanently isolating the radioactive absorbents from environment due to its high stability under natural environmental conditions, and interaction with the aluminosilicates on the interface of the phases. The new materials formed in the geocement compound material, may include in their structure the radionuclides of Sr and Cs as isomorphic substitutions, and in case of their large amounts, to form their own structure, differing thermodynamic stability and high environmental resistance.

Various forms of mineral materials create conditions for obtaining specific composition with the aim of including in them different middle level active wastes (MAW) in the form of aluminosilicates sorbents differing with chemical contents. The necessity of development of reliable compound based on radiative steady minerals is the focus among the specialists all over the world that are occupied with in the sphere of treatment with RW.

The geocements are mineral binding materials showing hydraulic solidification ability. As result of the solidification, they crystallize, re-crystallize and form stable to the natural aggressive media analogues of minerals enabling the incorporation of radioactive Cs and Sr isotopes in their structure.

Huge quantities of low-price volcanic glasses, like perlite, volcanic tuff, obsidian, etc., are common in Armenia and Russia. The wide expansion of volcanic glasses (perlite species), constancy of chemical and mineralogical compositions, the detailed examination of every deposit and the low prime cost allow to examine these volcanic glasses as ready for industrial use as mineral binders. Obsidians and other volcanic rocks lose water during the calcination forming an expanded porous material. Perlites, which are rapidly cooled igneous minerals, have amorphous structure. Being fine ground (up to 350 m<sup>2</sup> / kg), they show a high chemical activity.

The variety of the natural forms of aluminosilicate glasses should be studied aiming at their potential application for getting binder systems which form geocement rocks (GCR).

The advantage of binders on the basis of the geocement is the formation of new stable phases in their compound determining their durability of geocement compounds-one of the major quality suitable for compound materials which are used for immobilization of radioactive wastes.

The possibility of applications of various modifying additives (e.g., silicones) for obtaining special waterproof "backfill" and durable concrete based on the Portland and other cement types will also be studied in the proposal.

The authors of the proposal are experienced in the geocement processing on the basis of FGFS (fine ground granular blast furnace slag), while the application of the natural radiative steady materials as compound materials will be studied for the first time.

Before the authors of this proposal is the task of increasing the longevity of the solidified rocks by means of utilization of novel binding materials and result in new inexpensive and radiation stable materials using simple and cost-effective technology and natural minerals as raw materials.

The final decision on the feasibility of use of any cement compound will be taken after evaluation of the water stability data obtained by long-term investigation of the <sup>137</sup>Cs leaching rate as well as by geocement rock- compound structural studies (GCR).

#### **Justification**

##### **(a) Reasons why the research is needed, together with an overview of the results expected at the end of the proposal.**

The basic source of radioactive waste in Armenia is the Medzamor Nuclear Power Plant. The installed capacity of this NPP is 880 MW. For the period of exploitation the Armenian NPP (exploitation began in 1976, after Spitak earthquake in 1989 the station was conserved and then it was set on again in 1995) it accumulated a big amount of highly active, medium-active and low-active wastes (including LRW). During the exploitation period at the ANPP has accumulated and kept in the corresponding storages the a plenty of SRW (solid radioactive wastes): low- active, middle-active and highly active.

Water disposals from the Armenian NPP at last enter the river Araks. Besides wastewaters, from Armenian NPP throws out to the atmosphere a certain amount of radionuclides ("Report about the radiation atmosphere in sanitary-defense zone and zone of observation of Armenian NPP Metzamor, 1978-2002"). It is also worthy to mention that just next to Armenian NPP is situated the object CJS "Sterilization of radioactive wastes". This enterprise is also situated in the basin of river Sev-Jur, entering river

Araks. The square of this object is situated on the territory where the ground waters pass on the depth of 25 meters, with a direction to the river Sev-Jur.

The result of the activities performed within the framework of the Proposal is the development of a new technology for conditioning LRW, esp. radioactive natural sorbents (zeolites) and slimes (silt formations being accumulated in settling tanks) also pertinent to MAW (or their separate conditioning), development of technical task and selection of equipment for constructing a pilot test facility to study the technological process parameters of radioactive sorbent cementation applied to the problems of radiation safety upgrading at Armenian NPP. This technology may be applied in the centers of LRW conditioning of other countries.

**Expected Results and Their Application:**

- Development of the liquid radioactive waste products conditioning technology, including those saturated by the radionuclides' sorbents and sludge, by means of inexpensive natural materials as a components of a binding system of the geocement stones;
- Development and recommendation of a new principle for reliable isolation of the radioactive waste products from the environment on the basis of promising natural minerals and technological methods of their preparation for obtaining new initial rough products which form the geocementing agents;
- Promotion of decision of the environmental problems by the recommendation on application of the developed inexpensive systems of LRW conditioning esp. sorbents saturated with radioisotopes including natural zeolites and sludge with an essential economic gain.

Proposed technology can be used also in other branches of industry (for example, chemical) in handling wastes like high salt water solutions containing toxic and harmful chemical materials as well as with the object to solidify them into water resistant compounds convenient for long-term storage at industrial waste storage plants, whereby the potential risk of the environmental pollution by noxious chemical substances will be avoided, and the storage cost will be reduced.

The results of the activities under this Proposal involve the implementation of measures for protection of intellectual property rights including patent applications and license agreements.

**(a) How the results of the proposal will contribute to improved security in the participating Partner (from EU) countries.**

The proposal corresponds closely to the aim and programs of International Atomic Energy Agency (IAEA). In particular, the safe storage of radioactive wastes from nuclear power plants (NPP) is a pressing world need.

This proposal will provide new technology on the utilization and safe storage of liquid radioactive waste. Specifically, natural, inexpensive, and stable minerals of Armenia and Russia, as well as stable industrial waste, will be used as components of geocement (geocement rock), for isolation of radionuclides from the biosphere for a period of over 300 years. This plan will contribute to an increase of radiation safety at Armenians and Russians NPP-s as well as at those in other countries.

**(b) The novel aspects of the proposal (eg. new physical principles, new industrial processes, new environmental methodologies, etc). How do these differ from traditional methods or processes?**

Demands on LRW isolation from the environment for a period up to a practically full decay of radionuclides resulted in the necessity of transforming radionuclides into chemical forms featuring stability to the impact of natural mediums (durability), suitability for ecologically safe burial or long-term storage.

Now, there are two basic approaches to the management of LRW concentrates, namely: long-term storage in the tanks and curing with the binder.

Long-term storage of LRW in the tanks cannot be considered as the final solution of the problem because of low reliability of the method resulting from the permanent threat of unauthorized leakage and required considerable area for constructing new tanks. Besides, long-term storage causes slurry release and salt crystallization in the tanks, causing considerable complication and cost increase of repair work in case of accident. Therefore, curing of concentrates is considered more expedient from the standpoint of technology and environmental control.

Applied to medium-active LRW containing  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  (the most important LRW radionuclides), the following four basic methods of production of stable solidified forms of this waste are considered in domestic and abroad literature: bitumination; cementation, vitrification, containerization of dry salt concentrates after water evaporation.

Each of the three above-listed methods has its advantages and shortcomings associated with the solution of ecology, economy and safety problems. These criteria are primarily of mutually exclusive nature, which generates the need for search of compromise solutions.

Requirements imposed upon ecology and safety are of high priority today. They have to take into account interests of the future generation, since a heavy burden of responsibility for RAW isolation from the biosphere should not be placed on it. Society which has gained the most benefit from the use of nuclear energy must carry this load including the financial one for LRW isolation from the environment (IAEA Norms). It is without question, that the modern engineering, social and economic potentialities should be properly accounted for in this case.

Now, there is an opinion that cementation is quite promising method of LRW immobilization, since the new types of water-resistant cements have been developed assuring their durability (stability of cements in time), as well as because of relative simplicity of the process, low cost of current composition of cements, its fire resistance, rigidity, radiation resistance and sufficient thermal conductivity and mechanical strength.

The most important parameter of technical, economical and ecological efficiency of technology of LRAW disposal is the decrease of waste volume in the process of its conditioning. The most significant effect is achieved by using sorption extraction of biologically important radionuclides from LRAW followed by immobilization of radioactive sorbents in geocement stone. It is desirable that these sorbents used as geocement fillers are chosen from the class of minerals with element composition and structural forms similar to those of the new formations included in geocement stone. The latter factor

assures better filler interaction with geocement components in the contact areas. First of all, these sorbents include natural zeolites, namely: clinoptilolite and mordenite effectively sorbing Cs-137, Sr-90 and other sorbents.

**The proposed technology is designed for the following tasks:**

- ensure ecologically reliable isolation of radionuclides  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  from the environment by conditioning the LRW;
- reduction of the volumes of solid RW subject to long-term storage, which are obtained in the solidification of liquid concentrated intermediate-level wastes (vat residues, LRW) of NPP liable for long-term storage;
- considerable simplification of technological process for conditioning high salt content of LRW, which will provide the incorporation of total cost of radionuclides, inorganic and organic substances into water-stable and mechanically strong isolating compound ;
- development of fire-safe technology not power-intensive and not resulting in the formation of secondary chemically toxic and radioactive wastes;
- obtaining the cement stone with upgraded water resistance and mechanical strength;
- use readily available and wide-spread natural raw materials, technology-related inorganic materials (wastes from metallurgical and other production) and structural materials for the CLRW conditioning;
- development of new promising materials based on natural radiative-stable minerals, appropriate formula and technology of production of geocement binder;
- development of equipment and RAW cementing technology being characterized by high technical-and-economic indices.

**Subject of development**

- \* Justification of the choice of promising natural minerals and techniques of their treatment for production of reference raw materials building up the geocement binder.
- \* Development of formula and technological process parameters of conditioning LRW, particularly, in time of sorbent immobilization into geocement compound.
- \* Development of demonstration cementing facility and technology of sorbent conditioning into geocement compound.
- \* Study of structure and properties of specimen samples of geocement rock, experimental and theoretical justification of its durability ensuring  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{90}\text{Sr}$  radionuclides isolation from the biosphere over a period of more than 300 years [24].

**Novelty of the work**

Use of natural minerals as reference raw material of the binder and development of unconventional technologies of mineral treatment and cementing at conditioning LRW and radioactive sorbents into radiative-stable alkaline aluminosilicate compounds being distinguished by high waterproofness to natural aqueous media.

As a result of the proposal implementation there will be developed a **technology** characterized by:

- A minor energy and material consumption, minor amount of stages,
- Fire-safety,
- Excluding the formation of secondary radioactive wastes with additional chemical toxicity; it is based on the use widely available natural and technology-generated materials;
- It will provide with incorporation of all radionuclides, inorganic and organic substances-components of CLRW into water-resistant isolating compound with enough mechanical durability;
- A contribution to the resolving ecological problems by means of practical implementation inexpensive conditioning systems with a tangible economic effectiveness.

It is suggested also in the proposal to consider the issue of combining sorbent conditioning with slime conditioning (silt formations being accumulated in settling tanks) also pertinent to middle-active wastes (MAW) or their separate conditioning.

The introduction of this technology into practice would decrease potential hazard of LRW impacts on the environment.

**Implementation of the Results** (what measures will be taken by the Co-Directors to ensure the implementation of the results of the proposal by public bodies, industry or commercial enterprises?).

Proposal results can be realized as technical solutions allowing the use of the developed technology and producing wares with consumer properties competitive in the market.

The expected results are oriented to industrial application of the new technology of RLW management.

Commercialized results will provide the improvement and application of the RLW management technology.

Besides the technology of RLW management itself, the computational models of the technology and composition of the charge being used can be the commercialized results of the proposal.

The commercialized results will be patented with following sale of licenses of patented objects.

The materials to be developed in the frames of this proposal are claimed in atomic energy, chemical and other adjacent areas for fabrication of goods with improved functional characteristics.

To decrease the amount of existing RLW and prevent the accumulation of new waste

The commercialized results will be patented with following sale of licenses of patented objects.

The uniqueness of the expected results are oriented to industrial application of the new technology Immobilization of RLW, by means of inexpensive natural materials as a components of a binding system of the geocement stones

**RADIOPROTECTIVE PROPERTIES OF HYPERICUM PERFORATUM**

\*Shamilov E.N., \*Rzayeva I.A., \*Abdullayev A.S., \*\*Azizov I.V., \*\*Shamilli V.E.

\* *Institute of Radiation Problems of Azerbaijan National Academy of Sciences,*

*B. Vahabzade str. 9, AZ1143, Baku, Azerbaijan, tel.: (99412) 5383224, fax (99412) 5398318, e.shamilov@mail.ru*

\*\* *Institute of Botany of National Academy of Sciences of Azerbaijan;*

*Badamdar Highway 40, AZ1073, Baku, Azerbaijan, tel.: (99412) 5381164, fax (99412) 53 933 80, i.azizov@rambler.ru*

**Introduction**

In recent years scientists and physicians give much attention to studying the nature of biological activity of individual components of plant materials and their mechanism of action on a living organism. At the same time improving methods of isolation and purification of biologically active compounds, various modifications are carried out, that aimed to get the drug with predetermined therapeutic properties to ensure the strengthening of human health.

Under the influence of adverse environmental factors (including radiation), decreases the resistance of the body. By reducing the body's resistance against the all adverse environmental factors radiation also affects the immune system, which in turn is provided to be a general weakness, susceptibility to various diseases.

In this case, there may help medicinal plants that belong to a group that generally strengthen the body. Means that improve the overall resistance of the body, improve the natural radioresistance of the organism. As a rule, they are administered a few days or hours prior to irradiation in amounts that do not produce, any hazardous, toxic effects. [1]. The protective action of these compounds is most pronounced during irradiation, causing the death of 20-70% of the animals. Among the most effective means in this group include lipopolysaccharides, polyphenol complex, flavonoids, terpene saponins, a combination of amino acids and vitamins, etc. The introduction of such compounds to animals before the irradiation facilitates radiation sickness, increases survival, reduces the degree of metabolic imbalance processes, and hematopoiesis etc. The protective effect of these means is probably due to increased activity of the pituitary-adrenocortical axis system, increasing the ability of hematopoietic cells to multiply, stimulation of reticuloendothelial system, increased immunological reactivity of an organism and etc. These means speed up the process of protein and nucleic acids synthesis in the cells that contribute to the restoration of unique genetic structure. There is evidence indicating the ability of these means to increase the body's resistance not only against radiation but also against other pathogenic influences.

In conditions of prolonged irradiation of animals at the exposure dose rate below 1 R/min even the most effective radioprotectors do not have a prophylactic effect. Just why special attention should be paid to a new data on the effectiveness of means in these conditions that promote reparation of unique genetic structure.

Under the influence of radioprotective substances of plant origin in the irradiated animals necrobiotic processes weaken in the hemopoietic organs and intestines, reducing the number of cells with chromosomal rearrangements, there is a more rapid recovery of mitotic activity. This is due to interference of radioprotective substances in the primary physical and chemical processes of radiation damage (interception of reactive free radicals).

In earlier studies we widely investigated the radioprotective effect of extracts derived from medicinal plants of Azerbaijan [3-10].

St. John's wort (*Hypericum perforatum* L.) is widely used to treat diseases of the biliary tract, hepatitis, cholecystitis, gastritis with secretory insufficiency, flatulence, as well as reducing the filtration capacity of the kidneys.

In consideration of the high biological activity of constituents of *Hypericum perforatum*, we conducted research to identify its radioprotective influence. The composition of St. John's wort contains the following active substances: flavonoids (hyperoside, rutin, hypericin, pseudohypericin, hyperforin, quertsitrin, isoquertsitrin and quercetin), fluorescent, dyes substances and tannins, carotene, essential oils, resins, niacin and ascorbic acid, vitamin P and PP, choline, anthocyanins, saponins, alcohols, traces of alkaloids and other compounds.

**MATERIALS AND METHODS**

To study radioprotective properties we have obtained an extract of *Hypericum perforatum*. Usually in medical practice there is used alcoholic extracts of biologically active substances, for both internal and external use. Extraction was carried out in alcoholic solution, when boiled with a reverse ball refrigerator. Evaporation of the solvent was carried out in vacuum on a rotary evaporator at 30-40 ° C until mushy residue.

The study was performed on adult Wistar rats of average weight 100-120 grams. 15 animals (6 ♀, 9 ♂) took part in experiments. 3 hours before irradiation, the animals were injected intraperitoneally with Hypercom extract in a concentration of 50 mg/kg. The irradiation was performed once in doses of 5 and 7 Gy at the "Rhund-20000" with an average radiation dose MD = 0,3069 Gy/sec. Slaughter of animals was performed one day after irradiation. The frequency of chromosomal aberrations was recorded on mitotic cells of the bone marrow. Preparations of bone marrow obtained by the method of Ford and Hamerton [11]. Staining was performed according to Rajabli, Kryukova [12], Howell, Black [13]. Selection of plates was carried out according to the criteria proposed by Drum and colleagues [14] and Zakharov [15].

For analysis of chromosome sets used microscope "Amplival." Photomicrography was carried out automatically by photo attachment MF (lens x100, eyepiece x4,1 Proectiv). For every animal investigated at least 250 metaphase plates of bone marrow (Table 1).

Type of Effects, and characteristics of the investigated material

Type of exposure	Number of examined rats	Number of studied mitotic cells
Intact Control	2 ♂+ 1 ♀	560
γ-irradiation 5 Gy	1 ♂+ 1 ♀	573
γ- irradiation 7 Gy	1 ♂+ 1 ♀	544
Hypericum perforatum L. extract	1 ♂+ 1 ♀	645
Hypericum perforatum + 5 Gy	2 ♂+ 1 ♀	594
Hypericum perforatum + 7 Gy	2 ♂+ 1 ♀	495

### RESULTS AND DISCUSSION

Cytogenetic analysis of bone marrow cells in control white rats revealed no structural chromosome damages. The frequency of aberrations was 0,54%. These were mostly quantitative disorders such as polyploid and aneuploid plates. Introduction of *Hypericum perforatum* L. extract did not make any effect on the magnitude of spontaneous mutations (Table 2).

Table 2

Effect of *Hypericum perforatum* L. extract on the frequency of chromosomal aberrations in bone marrow cells of albino rats

Variants	Number of metaphases (total)	Number of metaphases– 2n=42	Polyploid metaphases	Aneuploid metaphases	Structural disorders	% of disorders
Intact control	560	572	2	1 (n>42)	-	0,54
Irradiation 5Gy	573	555	9	7(n>42) 4(n<42)	14	6,8
Irradiation 7Gy	544	612	16	9(n>42) 6(n<42)	29	11,02
Hypericum perforatum L. extract	645	589	2	1(n>42) 1(n<42)	1	0,78
Hypericum perforatum L. extract + 5 Gy	594	613	7	3(n>42) 5(n<42)	9	4,04
Hypericum perforatum L. extract + 7 Gy	495	523	12	5(n>42) 8(n<42)	20	9,1

Acute exposure in a dose of 5 Gy resulted in inhibition of cell division. Due to structural defects (deletions, fragments, inversions) number of chromosomal aberrations increased up to 6,8%. In the animals that received a dose of 7 Gy in a single irradiation frequency of chromosomal abnormalities increased up to 11,02%. In this case there was observed a sharp increase of ring chromosomes, dicentrics, and fragments of single mitotic cells in the bone marrow.

Inhibition of cell division is the result of exposure to ionizing radiation doses. With increasing doses of radiation there are more cells losing their ability to divide or at least they stopped the fission process, which leads to the appearance of polyploid cells. So, in animals irradiated with a dose of 7 Gy dramatically increased the number of tetraploid and octoploid cells. However, the percentage of structural chromosomal disorders was higher than in the control experiments, and lower than in experiments with acute irradiation. The highest percentage of violations was observed when animals were irradiated in a dose of 7 Gy.

Analysis of germ cells showed their significant sensitivity to influence of acute exposure. These cells were much more sensitive than bone marrow cells, almost 3 times. Increased number of spermatocytes with signs of degeneration, increased frequency of violations of conjugation between X and Y chromosomes. It was also noted an increase in polyploid and aneuploid meiotic plates at metaphase I and metaphase II.

Introduction of *Hypericum perforatum* L. extract mitigated the effects of ionizing radiation, by reducing the mutational effects of radiation. Little inhibition of cell division observed. It is not only contributed to the restoration of cell division, but also reduced the proportion of structural defects (Tab.2).

We have also conducted experiments where animals received *Hypericum* extract after irradiation. Terms and administration of the extract remained, as in the administration of the extract prior to irradiation. It was found that the introduction of the extract after gamma irradiation also mitigated the effects of ionizing radiation: the percentage of structural chromosomal disorders was higher than in unexposed control options, and lower - in the versions with acute irradiation.

In our opinion, an extract of hypericum can be considered as a promising radioprotective mean of plant origin. Further researches on identifying more effective concentrations and genetic effects caused by chronic irradiation with introduction of multiple doses of hypericum extract may be present a great interest.

This work was supported by a STCU grant number 5080.

#### REFERENCES

1. Yarmonenko S.P., Antiradiation protection of the body. M., 1969.
2. Aliev R.K., Prilipko L.I., Damirov I.A. Medicinal Plants of Azerbaijan; Directory. - Baku: Azerbaijan State Publishing House, 1972.
3. Shamilov E.N., Abdullayev A.S., Rzayeva I.A., Azizov I.V. / Influence of iron complexes on the formation of photosynthetic apparatus and yield of genetic changes in gamma-irradiated wheat seeds / Visnyk of Dnipropetrovsk University. Biology.Medicine. - 2010. - Vol. 18. N2. - P. 90-95.
4. Azizov I.V., Abdullayev A.S., Shamilov E.N., Rzayev A.A., Akhmedov I.D. Effect of Hypericum extract (*Hypericum perforatum* L.) and peganum (*Peganum harmala* L.) on growth of wheat seedlings. "Proceedings of the Institute of Botany of NAS of Azerbaijan", XXVII vol., Baku, "Elm" -2007., Str.182-184.
5. Mamedov N.A., Craker L.E., Shamilov E.N., Rzayev A.A., Abdullayev A.S., Rzayeva I.A., Gasimova N.I., Guliev G.N. / Radioprotective Activity of Some Medicinal Plant Extracts / Science and Horticulture for People, Lisboa 2010, Abstracts. Volume 1, 28th International Horticultural Congress. Lisbon Congress Centre. August 22-27, 2010, p. 84. International Society for Horticultural Science ISHS.
6. Kasumov F.Y., Shamilov E.N., Abdullayev A.S., Kasumova N.I., Kuliev G.N. / Investigation of the component composition of the extract of saffron (*Crocus sativus* L.) and its antiradiation action / Russia. Supplement to the magazine "Traditional Medicine" № 3 (22) 2010, p.140-146.
7. Shamilov E.N., Abdullaev A.S., Akhmedov I.D., Azizov I.V. Study of antiradiation properties of polymer-modified extract of *Hypericum perforatum* L. International Conference "Radiobiological and radioecological aspects of the Chernobyl disaster." International Association of Academies of Sciences, National Academy of Sciences of Ukraine and Russia. Abstracts. Slavutyeh, 2011. 149.
8. Shamilov E.N., Abdullayev A.S., Rzayeva I.A. / Antiradiation activity of the extract of *Achillea millefolium* L. / min. Education and Science of Ukraine, Radiobiological Society-operation of Ukraine, International Conference "Radioprotectors, effective action by chronic exposure to low doses," 16-20 June 2008, Mykolayiv, p.86-87.
9. Shamilov E.N., Rzayev A.A., Abdullayev A.S., Kasumova N.I., Kuliev G.N., Mamedrzayeva E.T., Gaza A.G., Azizov I.V. / Cytogenetic changes of irradiated rats under the influence of plant biocomplexes / Proceedings of the Georgian Academy of Sciences, Biological Series A, Volume 35, Tbilisi 2009, str.393-401.
10. Shamilov E.N., Abdullayev A.S., Azizov I.V. / Studying of radioprotective properties of some plant extracts. Proceedings of XX International Symposium of the anniversary, "Non-traditional crops. Breeding and genetics. Protection bionoosfery. Eniologiy.Ecology and Health "4 - September 11, 2011 Alushta Simferopol - 2011. pp. 509-514.
11. Ford C.E., Hamerton J.L. A colchicines hypotonic citrate squash sequence for mammalian chromosomes // Stain Technol., 1956, v.31, s. 247-251.
12. Rajabli S.I., Kryukova E. The comparative analysis of the differential staining of chromosomes of two species of hamsters, Chinese and Daurian // Cytology, 1973, t.15, s.1527-1531
13. Howell W.M., Dlack D.A. Controlled silver staining of nucleolus organizer regions with a protective colloidal developer: in a one step method // Experientia, 1980, v.36, s.1014-1015.
14. Bochkov N.P., Kozlov V.M., Sevankaev A.V., Antoshina M.M. Analysis of aneuploidy in cultures of embryonic human fibroblasts // Genetics, 1966, № 10, 120-124.
15. Zakharov, AF Human chromosomes // Problems of linear organization / Out of "Medicine", 1977, p.2-192.

#### Summary

There have been studied influence of gamma radiation on chromosome aberrations and cell division of Wistar white rat red bone marrow cells, and the effect of hypericum extract on these processes. It was known that the extract of hypericum reduce the mutagenic effect of radiation, help in restoration of cell division and decrease structural disorders.

## ВЛИЯНИЕ МГНОВЕННОГО ВОЗРАСТАНИЯ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА В МОМЕНТ АВАРИИ НА РЕАКТОРЕ ЧЕТВЕРТОГО ЭНЕРГБЛОКА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС НА ИЗОТОПНЫЙ СОСТАВ УРАНА ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ЧАЭС

В.И. Садчиков, В.Н. Забродский, Ю.И. Бондарь, В.Н. Калинин  
 Министерство по чрезвычайным ситуациям Республики Беларусь.

Департамент по ликвидации последствий катастрофы на Чернобыльской АЭС

Учреждение «Полесский государственный радиационно-экологический заповедник», г. Хойники, Беларусь

*Некоторые экспериментальные значения отношения  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  в образцах почвы, отобранных на территории зоны отчуждения ЧАЭС, превышают аналогичные значения, полученные расчетным путем при работе реактора в штатном режиме до аварии. Максимальные экспериментальные значения равны (2,1– 2,3)  $10^{-3}$ , а теоретически рассчитанные значения  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  порядка  $1,9 \cdot 10^{-3}$ . Нами высказано предположение, что причина этого несоответствия состоит в том, что при расчёте теоретического значения  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  не учитывался резкий рост реактивности реактора 4-го блока ЧАЭС, достигающий значения (2-4)  $\beta\text{эфф}$  в момент аварии, и, как его следствие, почти мгновенное возрастание плотности нейтронного потока, что и привело к катастрофе. Возрастание нейтронного потока в  $10^5$ – $10^6$  по отношению к номинальному обусловило дополнительную наработку  $^{236}\text{U}$  (материнский элемент  $^{235}\text{U}$ ) и вероятное перераспределение содержания других радионуклидов в Чернобыльских выпадениях. Величина нейтронного потока в момент разгона реактора, полученная при расчете дополнительного количества  $^{236}\text{U}$ , коррелирует со значением потока при расчете дополнительной наработки  $^{241}\text{Pu}$  в топливе реактора в момент аварии.*

### Введение

Изотопный состав урана, продуктов деления и активации в облученном ядерном топливе определяется его начальным обогащением, степенью выгорания топлива и нейтронными спектральными характеристиками реактора. В реакторе четвертого блока Чернобыльской АЭС выгорание значительно различалось по активной зоне реактора, потому что использованное топливо постепенно заменялось свежим обогащенным ураном, и топливные сборки имели различные ядерные истории. Во время аварии топливо было перемешано от различных топливныхборок, поэтому радиоактивное загрязнение окружающей среды различно по изотопному составу. Согласно Бегичеву С.Н. и др. [1], обогащение по  $^{235}\text{U}$  в топливе реактора четвертого блока ЧАЭС изменяется от 0,84 до 1,9 % веса. Атомное отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  в отработанном чернобыльском топливе может достигать высокого значения, такого как  $1,92 \cdot 10^{-3}$  [2].

Отношение изотопов  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  в отработанном ядерном топливе зависит от типа реактора и глубины выгорания и оно на несколько порядков выше по величине чем отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  в незагрязненных естественных рудах урана. Поэтому отношение изотопов  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  представляет самый чувствительный и универсальный индикатор присутствия антропогенного урана в окружающей среде, происходящих из ядерных устройств. Кроме того, изотопный состав урана позволяет получить информацию о начальном обогащении реакторного урана, основной истории активной зоны и истории поставарийного периода, а так же дать более точную оценку радиозэкологической ситуации в загрязненных областях.

В применении к топливу разрушенного четвертого блока ЧАЭС, эта величина позволяет определить выброс радионуклидов из различных областей реактора и процессы, происходившие в зоне реактора во время активной стадии аварии на ЧАЭС.

В работе используются расчетные и экспериментальные данные по содержанию изотопов  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  и  $^{238}\text{U}$  и их отношений в образцах почв и индивидуальных частиц, взятые из опубликованных работ разных авторов [1-10].

Цель работы – расчет наработки  $^{236}\text{U}$  и количества выгоревшего  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Pu}$  в момент аварийного разгона реактора 4-го блока Чернобыльской АЭС.

### 1. Расчетные и экспериментальные данные

Выбор изотопа  $^{236}\text{U}$  для исследования динамики изменения изотопного состава U в облученном ядерном топливе в момент аварийного разгона реактора 4-го блока Чернобыльской АЭС определяется двумя особенностями:  $^{236}\text{U}$  не делится на тепловых нейтронах и его нет в природном уране. Изотоп  $^{236}\text{U}$  ( $T_{1/2} = 2.342 \cdot 10^7$  лет) нарабатывается в реакторе из  $^{235}\text{U}$  через (n,  $\gamma$ ) реакцию  $^{235}\text{U} + n \rightarrow ^{236}\text{U} + \gamma$ , которая конкурирует с реакцией деления  $^{235}\text{U}$  и, в намного меньшей степени, при  $\alpha$ -распаде  $^{240}\text{Pu}$ . По мере увеличения времени работы реактора отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  становится ниже из-за выгорания  $^{235}\text{U}$ . Одновременно с этим происходит нарабатывание  $^{236}\text{U}$  и увеличивается отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ . Нарбатываемое количество  $^{236}\text{U}$  имеет практически прямую зависимость от выгорания [4].

В литературе, просмотренной и изученной авторами, данных по содержанию  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  на момент аварии 4 блока ЧАЭС, к сожалению, мало. При теоретическом расчете содержание  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  и других радионуклидов в топливе активной зоны определялось, исходя из степени выгорания топлива и времени его работы на заданной мощности. Расчетные данные массового содержания  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ , и  $^{238}\text{U}$  и их массовых отношений в активной зоне 4 блока ЧАЭС на момент аварии из найденных на настоящее время разных литературных источников приведены в таблице 1.1.



Таблица 1.1

Источник		[2]	[3]	[4]	[5]
Выгорание		12,85МВт·сут/кг U	12,9МВт·сут/кг U	11,5МВт·сут/кг U	10,5МВт·сут/кг U
Содержание на момент аварии кг/т U	<sup>235</sup> U	6,4	6,25	7,0	9,25
	<sup>236</sup> U	1,85	1,87	1,82	1,73
	<sup>238</sup> U	966	974	970	972
	<sup>236</sup> U/ <sup>235</sup> U	0,288	0,296	0,26	0,187
	<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U	$6,6 \cdot 10^{-3}$	$6,42 \cdot 10^{-3}$	$7,4 \cdot 10^{-3}$	$9,5 \cdot 10^{-3}$
	<sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U	$1,9 \cdot 10^{-3}$	$1,92 \cdot 10^{-3}$	$1,87 \cdot 10^{-3}$	$1,78 \cdot 10^{-3}$

В дальнейшем при сравнении теоретических и экспериментальных значений рассматриваемых величин будем исходить из данных работы [2].

В работе [6] представлены результаты исследования отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) методами деструктивного анализа. Представлены данные по изотопному составу U, Pu, Am, Cm и выгоранию топлива для образцов ОЯТ реактора РБМК–1000. Эти данные, относящиеся к конкретному атомному реактору, а именно, к Ленинградской АЭС, аналогичной Чернобыльской АЭС, дают возможность получить наиболее достоверную информацию о нуклидном составе ОЯТ и делать интерполяционное сличение с используемыми нами далее экспериментальными данными по содержанию изотопов U в образцах Чернобыльских выпадений. Массовое содержание <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>238</sup>U и их отношений приведены в таблице 1.2.

Таблица 1.2. Массовое содержание U в начальном уране (кг/т U<sub>0</sub>) на конец облучения. Реактор РБМК–1000. Расчетное выгорание 13,8 кг/т U<sub>0</sub> [6].

№образца	<sup>235</sup> U	<sup>236</sup> U	<sup>238</sup> U	<sup>235</sup> U/ <sup>236</sup> U	<sup>236</sup> U/ <sup>235</sup> U	<sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U	<sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U
12	5,01	2,03	971,8	2,46	0,406	$5,15 \cdot 10^{-3}$	$2,09 \cdot 10^{-3}$
13	5,94	1,95	972,5	3,11	0,322	$6,11 \cdot 10^{-3}$	$1,96 \cdot 10^{-3}$
14	5,88	1,96	972,3	3,1	0,323	$6,05 \cdot 10^{-3}$	$1,95 \cdot 10^{-3}$
16	6,10	1,88	972,9	3,24	0,310	$6,27 \cdot 10^{-3}$	$1,94 \cdot 10^{-3}$
17	5,05	2,02	972,2	2,51	0,399	$5,2 \cdot 10^{-3}$	$2,06 \cdot 10^{-3}$
среднее	5,6	1,97	972,2	2,88	0,352	$5,75 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-3}$

Экспериментальные значения <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U, <sup>238</sup>U и их отношений, измеренные в образцах почвы, собранных в пределах 30-километровой зоны вокруг ЧАЭС из разных источников приведены в таблицах 1.3, 1.4, 1.5.

Для определения изотопного состава урана в поверхностном слое почвы, в [7] использовался метод масс-спектрометрического анализа, позволяющий с высокой точностью определить массовые изотопные отношения. Относительное содержание <sup>236</sup>U в поверхностном 5-см слое почвы 30-ти км зоны ЧАЭС приведено в таблице 1.3.

Таблица 1.3.

Место отбора	Расстояние от ЧАЭС	Отношение активностей <sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U <sub>0</sub>	Отношение активностей <sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U <sub>ч</sub>	Изотопное отношение <sup>236</sup> U/ <sup>238</sup> U <sub>ч</sub>	Изотопное отношение <sup>235</sup> U/ <sup>238</sup> U	Изотопное отношение <sup>236</sup> U/ <sup>235</sup> U
Погонное	27 км	0,14±0,04	0,35±0,1	$1,8 \cdot 10^{-3}$	0,00813	0,225
Крюки	15 км	0,15±0,04	0,27±0,08	$1,41 \cdot 10^{-3}$	0,00855	0,176
Радин	15 км	0,09±0,27	0,32±0,09	$1,6 \cdot 10^{-3}$	0,00790	0,202
Красноселье	20 км	0,16±0,05	0,39±0,11	$2,07 \cdot 10^{-3}$	0,00819	0,253
Масаны	8 км	0,31±0,09	0,39±0,11	$2,07 \cdot 10^{-3}$	0,0091	0,227

<sup>238</sup>U<sub>0</sub> – <sup>238</sup>U чернобыльского происхождения + природный <sup>238</sup>U;  
<sup>238</sup>U<sub>ч</sub> – <sup>238</sup>U чернобыльского происхождения

В местах отбора Красноселье и Масаны изотопное отношение <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U<sub>ч</sub> равно  $2,07 \cdot 10^{-3}$ , что соответствует выгоранию ~ 13,8МВт·сут/кг U (см. Таблицу 1.2).

В работах [8,9]. для идентификации и извлечения горячих радиоактивных частиц из образцов почвы, оценки их альфа-активности применялась ядерная трековая радиография. Объединение этого подхода с индуктивно связанной плазменной масс-спектрометрией позволило с высокой точностью проводить анализ изотопических составов микрообразцов. Величины отношений <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U, <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U даны в таблице 1.4.

Расчетные данные, приведенные в таблице 1.1, отличаются от отношений измеренных в почвенных образцах (таблицы 1.3, 1.4, 1.5.). Во первых, активная зона реактора содержала тепловыделяющие сборки (ТВС) с различной степенью выгорания и, как указывалось во введении, во время аварии было смешано топливо от различных ТВС.

Во вторых, как видно из таблицы 1.3, проанализированные микрообразцы, наряду с отработанным ураном, содержат некоторое количество природного <sup>238</sup>U от остатков почвы. Доля отработанного урана в смеси отработанный / естественный уран в образцах почвы изменяется от 10 до 77% [11] и зависит от расстояния до ЧАЭС.

Таблица 1.4. Массовые отношения изотопов  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ , измеренные в радиоактивных микрообразцах. Образцы почвы были собраны в зоне отселения ЧАЭС приблизительно 8 км на северо-запад от ЧАЭС в 1992. [9]

Образец	Размер, мм	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$
1		$(9.40 \pm 0.24) \cdot 10^{-3}$	4,484	$0.223 \pm 0.015$	$2,1 \cdot 10^{-3}$
2	0.30	$(8.6 \pm 0.2) \cdot 10^{-3}$	5,555	$0.180 \pm 0.011$	$1,55 \cdot 10^{-3}$
3	0.20	$(13.3 \pm 0.04) \cdot 10^{-3}$	9,43	$0.106 \pm 0.007$	$1,41 \cdot 10^{-3}$
4	0.30 0.35	$(7.95 \pm 0.20) \cdot 10^{-3}$	5,26	$0.190 \pm 0.011$	$1,51 \cdot 10^{-3}$

Таблица 1.5. Массовые отношения изотопов урана в поверхностных слоях почв вблизи реактора четвертого блока ЧАЭС, отобранных в 1986 г. [10].

Номер	Место отбора почвы	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{236}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$	$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$
1	Промплощадка 4-го энергоблока	$2,52 \cdot 10^{-2}$	16,08	$6,22 \cdot 10^{-2}$	$1,567 \cdot 10^{-3}$
2	р-н Яновского ж/д моста	$1,95 \cdot 10^{-2}$	14,28	$7,0 \cdot 10^{-2}$	$1,367 \cdot 10^{-3}$
3	Левый берег р. Припять	$1,87 \cdot 10^{-2}$	8,16	$12,25 \cdot 10^{-2}$	$2,3 \cdot 10^{-3}$
4	ст. Янов	$1,9 \cdot 10^{-2}$	13,05	$7,66 \cdot 10^{-2}$	$1,456 \cdot 10^{-3}$

## 2. Оценочный расчет количества наработанного $^{236}\text{U}$ и выгоревшего $^{235}\text{U}$ в момент аварийного разгона реактора

Рассмотрим влияние многократного возрастания нейтронного потока во время катастрофического разгона реактора на наработку  $^{236}\text{U}$  и выгорание  $^{235}\text{U}$ . Для количественной оценки этого влияния приведем необходимые физические характеристики реактора, топлива, сечения деления, радиационного захвата нейтронов и т. п. [1,6,12,13,14].

Тепловая мощность реактора – 3200 МВт, начальная загрузка топлива – 190,2 т (по урану) с начальным обогащением топлива – 2% по  $^{235}\text{U}$ . Сопоставление экспериментальных и расчетных отношений активности реперных изотопов позволило определить среднее выгорание топлива. Оно оказалось равным 12,85 МВт·сут/кг U. Основная же часть ТВС (75%) представляла собой ТВС первоначальной загрузки с выгоранием 12 – 15 МВт·сут/кг U [13].

Из расчетных значений  $^{236}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  работы [2] отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  для выгорания 13,8 МВт·сут/кг U равно  $2,04 \cdot 10^{-3}$ . Эта величина согласуется с экспериментальными данными [6] (см. таб. 1.2). Выделим максимальные значения отношений  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  из таблиц 1.3, 1.4, 1.5. Отношению равному  $2,07 \cdot 10^{-3}$  в пунктах отбора Красноселье и Масаны (см. таб. 1.3) соответствует выгорание 13,87 МВт·сут/кг U. При  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 2,1 \cdot 10^{-3}$  (таб. 1.4) выгорание равно 14,1 МВт·сут/кг U. В 1986 году в месте отбора Левый берег р. Припять (таб. 1.5) отношение  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  равно  $2,3 \cdot 10^{-3}$ , что соответствует выгоранию 15,4 МВт·сут/кг U. Это значение выгорание выше максимального. на 0,4 МВт·сут/кг U. Нарбатываемое количество  $^{236}\text{U}$  рассчитывалось исходя из его прямой зависимости от выгорания топлива [4].

Из физики ядерных реакторов на тепловых нейтронах следует, что при реактивности  $\rho > \beta_{\text{эфф}}$  (эффективная доля запаздывающих нейтронов, равная 0,005 для данной системы) реактор становится надкритическим на мгновенных нейтронах. Резкий рост реактивности активной зоны реактора 4-го блока ЧАЭС ( $\rho \approx 2 \beta_{\text{эфф}}$  [12, 13]) и, как его следствие, почти мгновенное возрастание плотности нейтронного потока. Возрастание нейтронного потока в  $10^5$ – $10^6$  по отношению к номинальному привело к дополнительной наработке  $^{236}\text{U}$  и стало причиной отличия в сторону увеличения фактического содержания других радионуклидов в чернобыльских выпадениях от величин, предсказываемых теоретическим расчетом [15]. В работе [15] сделан оценочный расчет наработки  $^{241}\text{Pu}$  при аварийном разгоне реактора в момент взрыва. Расчетная величина нейтронного потока оказалась равной  $4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек.

В работе [16] приведены результаты исследований ТЧ, выделенных из проб Западного радиоактивного следа, сформировавшегося в первый момент аварии. Во-первых, сделан вывод что, взрыв произошел в периферийной, «холодной» области реактора. Во - вторых, полученные результаты указывают на имевшее место воздействие на часть топлива очень короткой и мощной вспышки нейтронного потока. Она вызвала самоподдерживающую цепную реакцию в локальной области реактора, дальнейшее развитие которой было остановлено разрушением его активной зоны. В [17] даны результаты измерений содержания  $^{133}\text{Xe}$  и  $^{133\text{m}}\text{Xe}$ , проведенных в атмосферном воздухе г. Череповец, расположенного в 1000 км от ЧАЭС, в период с 22 апреля по 6 мая 1986 года. Из сравнения расчетных и экспериментально найденных значений отношения  $^{133}\text{Xe}/^{133\text{m}}\text{Xe}$  также сделан вывод о локальном характере мгновенного ядерного энерговыделения, которое произошло в той части реактора, где при работе энергоблока на номинальной мощности находилось сравнительно небольшое количество топлива, то есть ТВС первой загрузки с максимальным выгоранием. Массу топлива, вовлеченного в этот взрывной процесс, оценивают величиной от 0,01 до 0,1 % от общего количества топлива.

На основании принятых исходных расчетных и экспериментальных данных работы [17] приведем оценочный расчет наработки  $^{236}\text{U}$  и выгорания  $^{235}\text{U}$  на 1 тонну урана за 1 с аварийного разгона реактора для максимального выгорания топлива 15 МВт·сут/кг U, то есть для ТВС первой загрузки.

Плотность ядер урана в топливе можно найти по формуле  $N = n \rho N_A / \mu$ , где  $n$  – число атомов урана в молекуле  $\text{UO}_2$ ,  $\rho$  – плотность  $\text{UO}_2$ , равная 11,0 г/см<sup>3</sup>,

$\mu = 238+32=270$  г/моль – молекулярная масса  $UO_2$ ,  $N_A = 6,02 \cdot 10^{23}$  1/моль – число Авогадро. Тогда плотность ядер  $N$  ( $^{238}U$ ) =  $0,245 \cdot 10^{23}$  1/см<sup>3</sup>. Массовая доля  $^{235}U$  при выгорании топлива 15 МВт·сут/кг  $U$  равна  $4,2 \cdot 10^{-3}$ . Тогда число ядер  $N$  ( $^{235}U$ ) в 1 см<sup>3</sup>  $UO_2 = 0,245 \cdot 10^{23}$  1/см<sup>3</sup>  $\cdot 4,2 \cdot 10^{-3} = 1,04 \cdot 10^{20}$  ядер/см<sup>3</sup>.

Микроскопическое сечение радиационного захвата нейтрона  $^{235}U$ , т.е. сечение реакции  $^{235}U(n,\gamma) \rightarrow ^{236}U$   $\sigma_{\gamma \text{ теп}}$  равно 98,5 барн, величина резонансного интеграла  $I_{\text{рез}} = 144$  барна [16], жесткость спектра  $\gamma$  примем равную 0.5. Тогда

$$\sigma_{\text{рад.зах.}} = \sigma_{\gamma \text{ теп.}} + \gamma \cdot I_{\text{рез.}} = 98,5 \text{ барн} + 0,5 \cdot 144 \text{ барн} = 170,5 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2, \text{ а}$$

макроскопическое сечение  $(n,\gamma)$  реакции для  $^{235}U$  будет равно

$$\Sigma_{\text{рад.зах.}} = \sigma_{\text{рад.зах.}} \cdot N_{235U} = 1,04 \cdot 10^{20} \text{ ядер/см}^3 \cdot 170,5 \cdot 10^{-24} \text{ см}^2 = 0,0177 \text{ 1/см.}$$

Количество образовавшихся ядер  $^{236}U$  из  $^{235}U$  за 1сек при принятой плотности потока нейтронов  $\Phi = 4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек будет равно

$$N(^{236}U) = \Sigma_{\text{рад.зах.}} \cdot \Phi = 0,0177 \text{ 1/см} \cdot 4 \cdot 10^{19} \text{ нейт/см}^2 \text{сек} = 7,1 \cdot 10^{17} \text{ ядер/см}^3 \text{сек.}$$

Объем 1тонны урана в топливе ( $UO_2$ ) равен  $103,2 \cdot 10^3$  см<sup>3</sup>. Масса одного ядра  $^{236}U$  равна  $236/6,02 \cdot 10^{-23} = 39,2 \cdot 10^{-23}$  г. Получаем, что количество  $^{236}U$ , образовавшегося в объеме 1тонны урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора составляет  $\sim 30$  г  $^{236}U$ . При максимальном выгорании 15 МВт·сут/кг  $U$  массовое содержание  $^{236}U$  равно 2,2 кг на 1 тонну урана, а отношение  $^{236}U/^{238}U$ , с учетом выгорания  $^{238}U$  будет равно  $2,268 \cdot 10^{-3}$ . Прибавляя 30 г, наработанного  $^{236}U$  к 2,2 кг  $^{236}U$ , отношение  $^{236}U/^{238}U$ , с учетом выгорания  $^{238}U$  будет равно  $2,298 \cdot 10^{-3}$ . Это расчетное значение соответствует экспериментальному значению  $^{236}U/^{238}U$  образца почвы, отобранного на левом берегу реки Припять вблизи ЧАЭС. Оно равно  $2,3 \cdot 10^{-3}$ , что соответствует выгоранию 15,4 МВт·сут/кг  $U$ . Это значение выше максимальной величины выгорания на 0,4 МВт·сут/кг  $U$ . Из этого следует вывод, что взрыв действительно произошел в локальном месте и в периферийной, «холодной» области реактора.

Выгорание  $^{235}U$  во время аварийного разгона реактора будем рассчитывать также на максимальное выгорание 15 МВт·сут/кг  $U$ . При этом массовое содержание  $^{235}U$  равно  $\sim 4,0$  кг на 1 тонну урана. Микроскопическое сечение деления  $^{235}U$   $\sigma_{f \text{ теп}} = 582$  барна. Макроскопическое сечение  $(n, f)$  реакции для  $^{235}U$  будет равно

$$\Sigma_{\text{ДЕЛ.}} = \sigma_{f \text{ теп}} \cdot N_{235U} = 0,98 \cdot 10^{20} \text{ ядер/см}^3 \cdot 0,582 \cdot 10^{-21} \text{ см}^2 = 0,057 \text{ 1/см.}$$

Количество разделившихся ядер  $^{235}U$  за 1сек при  $\Phi = 4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек равно

$$N(^{235}U) = \Sigma_{\text{ДЕЛ.}} \cdot \Phi = 0,057 \text{ 1/см} \cdot 4 \cdot 10^{19} \text{ нейт/см}^2 \text{сек} = 0,22 \cdot 10^{19} \text{ ядер/см}^3 \text{сек.}$$

Получаем, что количество  $^{235}U$ , разделившихся в объеме 1тонны урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора составляет  $\sim 88$  г  $^{235}U$ .

Наряду с выгоранием  $^{235}U$  во время аварийного разгона реактора делятся (выгорают) изотопы  $^{239}Pu$  и  $^{241}Pu$ , наработанные за время работы реактора в нормальном режиме с аналогичным энерговыделением. При максимальном выгорании 15 МВт·сут/кг  $U$  их массовое содержание на время аварии было равно  $^{239}Pu \sim 2,1$ кг,  $^{241}Pu \sim 0,4$  на 1 тонну урана [6,17]. Микроскопические сечения деления равны [14]:  $^{239}Pu \sigma_{f \text{ теп}} = 748$ барн,  $^{241}Pu \sigma_{f \text{ теп}} = 1012$ барн.

При принятой плотности потока нейтронов  $\Phi = 4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек, количество  $^{235}U$ ,  $^{239}Pu$ ,  $^{241}Pu$  разделившихся в объеме 1тонны урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора составляет  $\sim 88$  г, 56 г, и 12 г соответственно. 156 г делящихся изотопов в объеме 1тонны урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора выделяют энергию равная  $\sim 13 \cdot 10^{12}$  Дж. В работе [17] масса топлива, вовлеченного в этот взрывной процесс, оценивали величиной от 0,01 до 0,1 % от общего количества. Содержание делящихся компонентов в топливе реактора на момент аварии принималось равным 4,5 кг  $^{235}U$ , 2,6 кг  $^{239}Pu$  и 0,5 кг  $^{241}Pu$  на 1тонну урана. В 190,2 тоннах загрузки реактора по урану, в этом случае, содержится 1452,6 кг делящихся изотопов. Минимальная оцениваемая величина – 0,01% от этого количества составляет 145,2 г, что практически совпадает с нашей оценкой энерговыделения при взрыве.

Следует учесть, что в наших работах расчет нарабатываемых и делящихся изотопов производился на 1тонну урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора. Согласно математической модели, разработанной в ИЯЭ им.И.В. Курчатова [12], второй пик мощности, который привел к взрыву и разрушению реактора, достиг 1500 000 МВт. Это соответствует  $\sim 20,1$  г делящихся изотопов (1 вт =  $3,1 \cdot 10^{10}$  делений). Величина этого энерговыделения в 7 раз меньше, чем рассчитанная нами на 1 тонну урана. Ясно, что нейтронный поток равный  $\Phi = 4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек, образовавшийся во время нейтронной вспышки, охватывал не весь объем, занимаемый 1 тонной урана в топливе. Объем топлива  $UO_2$ , вовлеченный в этот взрывной процесс, согласно модели ИЯЭ им.И.В. Курчатова [12] равен  $15 \cdot 10^3$  см<sup>3</sup>, то есть это  $\sim 15\%$  от объема 1тонны урана в топливе  $UO_2$ .

### Заключение

Из расчетных и экспериментальных данных можно сделать вывод, что  $^{236}U$  за 1 с аварийного разгона реактора нарабатывается  $\sim 30$  г  $^{236}U$ . При плотности потока нейтронов  $\Phi = 4 \cdot 10^{19}$  нейт/см<sup>2</sup>сек, количество  $^{235}U$ ,  $^{239}Pu$ ,  $^{241}Pu$  разделившихся в объеме 1тонны урана в топливе  $UO_2$  активной зоны за 1сек аварийного разгона реактора составляет  $\sim 88$  г, 56 г, 12 г соответственно.

Конечно, нарастание нейтронного потока произошло в некоторой небольшой локальной области активной зоны реактора, где и произошел взрыв. Основная масса топлива не подвергалась такому нейтронному потоку. На локальный характер мгновенного ядерного энерговыделения, обусловленного крайне неоднородным распределением нейтронного потока указывается также в работах [16, 17]. Поэтому и наблюдается большой разброс в экспериментальных данных по содержанию  $^{235}U$ ,  $^{236}U$ ,  $^{238}U$  и их отношений на территории ПГРЭЗ.

Естественно, что выброс радионуклидов от взрыва, который разрушил реактор, происходил в течении первых часов (суток) и сформировал Западный и Северо-западный радиоактивные следы, что подтверждают результаты работ [16, 17].

**Литература**

1. Бегичев С.Н., Боровой А.А., Бурлаков Е.В. и др. Топливо ректора 4-го блока ЧАЭС (краткий справочник) // М.: 1990.– 212с. (Препринт / Институт атомной энергии – № 5260/3).
2. Kirchner G., Noack C. Core History and Nuclide Inventory of the Chernobyl Core at the Time of Accident // Nuclear Safety. 1988. Vol. 29, №1, P. 1-5.
3. SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAS 2000 Report to the General Assembly, with Scientific Annexes. United Nations, New York, 2000.
4. Радиационный потенциал объекта «УКРЫТИЕ» / Н.В. Горбачева, В.Г. Молодых, Г.А. Шароваров. Минск, 2002. 21 с. Препринт / НАН Беларуси. Ин-т радиэкологических проблем; ИРЭП – 36.
5. Практическая реализация математического аппарата расчета радионуклидного состава «горячих» частиц: Отчет о НИР Ин – та проблем энергетики АН Беларуси / ИП АН Беларуси: Рук. Темы В.П. Слизов – Минск, 1994.- 142 с.
6. Макарова Т.П., Бибичев Б.А., Домкин В.Д. Исследование нуклидного состава отработавшего топлива реакторов ВВЭР – 440, ВВЭР – 1000 и РБМК – методами деструктивного анализа // Радиохимия, 2008, т.50, № 4 с. 361–370.
7. Конопля Е.Ф., Кудряшов В.П., Миронов В.П. / Радиация и Чернобыль: Трансурановые элементы на территории Беларуси – Гомель: РНИУП «Институт радиологии». 2007, 128с.
8. Boulyga Sergei F., Prohaska Thomas. Determining the isotopic compositions of uranium and fission products in radioactive environmental microsamples using laser ablation ICP–MS with multiple ion counters//Anal Bioanal Chem (2008) 390:531–539.
9. Boulyga SF, Klötzli U, Prohaska T (2006) J Anal Atom Spectrom 21:1427–1430.
10. Собонович Э.В., Чебаненко С.И. Изотопный состав урана в почвах ближней зоны ЧАЭС // Док. АН СССР.- 1990. Т.315, №4, С. 885–888.
11. Sergei F. Boulyga, Sabine Becker. Isotopic analysis of uranium and plutonium using ICP-MS and estimation of burn-up of spent uranium in contaminated environmental samples // J. Anal. At. Spectrom., 2002, 17, 1143–1147
12. Безбатченко Н.И. и др. Моделирование аварии на ЧАЭС // Атомная техника за рубежом.–1992. № 12. С. 3–11.
13. Информация об аварии на Чернобыльской АЭС и её последствиях, подготовленная для МАГАТЭ // Атомная энергия.–1986.– Т.61, вып.5.– С. 301–320.
14. Герасимов А.С., Зарицкая Т.С., Рудик А.П. Справочник по образованию нуклидов в ядерных реакторах.–М., Энергоатомиздат, 1989.
15. Садчиков В.И., Бондарь Ю.И., Забродский В.Н., Калинин В.Н. // Вестник национального ядерного центра Республики Казахстан. Выпуск 1(45), Март 2001, С. 62-67.
16. Петелин Г.И. и др. «Горячие» частицы ядерного топлива чернобыльского выброса в ретроспективной оценке аварийных процессов на 4-м блоке ЧАЭС // Радиохимия, 2003, т. 45, № 3, с.278 – 281.
17. Пахомов С.А., Дубасов Ю.В. Оценка величины мгновенного энерговыделения при аварии реактора на ЧАЭС / Труды Радиевого института им.В.Г. хлопина, т.XIV, 2009.

**ГИДРОГЕОЭКОЛОГИЧЕСКИЕ УСЛОВИЯ РАЗМЕЩЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ И ТОКСИЧЕСКИ ОПАСНЫХ ОТХОДОВ ГОРНО-ДОБЫВАЮЩИХ ПРЕДПРИЯТИЙ КЫРГЫЗСТАНА**

Атыкенова Э.Э.

*Кыргызский технический университет им. И. Раззакова  
Институт горного дела и горных технологий им. академика У. А. Асаналиева  
Института горного дела и горных технологий, E-mail [elita\\_kg@mail.ru](mailto:elita_kg@mail.ru)*

Естественные радиоактивные вещества широко распространены во внешней среде. Это в основном долгоживущие изотопы с периодом полураспада 108–1016 лет. В процессе распада они испускают альфа и бета-частицы, а также гамма-лучи. Естественные источники радиоактивного загрязнения в основном связаны с выходом на поверхность урановых руд и горных пород, имеющих повышенную природную радиоактивность (граниты, гранодиориты, пегматиты). Радиоактивное загрязнение атмосферы чрезвычайно опасно, так как радионуклиды с воздухом попадают в организм и поражают жизненно важные органы человека. Его влияние сказывается не только на ныне живущих поколениях, но и на их потомках вследствие появления многочисленных мутаций.

Не существует такой малой дозы ионизирующего излучения, которая была бы безопасна для человека, растений и животных. Даже в районах умеренного радиоактивного загрязнения увеличивается число людей, заболевших лейкозами.

Радиоактивные вещества распространяются не только воздушным путем. В миграции радиоактивных элементов большую роль играют цепи питания из воды эти элементы поглощаются планктоном, который служит пищей для рыб, они, в свою очередь, поедаются хищными рыбами, рыбоядными птицами и зверями. Радиоактивное излучение опасно для человека, вызывает у него лучевую болезнь с повреждением генетического аппарата клеток. Это ведет к появлению у людей злокачественных опухолей, наследственных заболеваний и уродств у потомства.

Из всех составных частей окружающей среды, природные воды являются одним из самых активных агентов миграции химических веществ. Именно вода остается, чуть ли не единственной (за исключением воздуха) доступной поглощению и усвоению живыми организмами - растениями, животными и человеком.

На территории Кыргызстана, по данным МЧС КР на реабилитацию хвостохранилищ и отходов только уранового производства требуется свыше \$40 миллионов долларов США (Рис.1-4) {1-10}.

Природные воды Кыргызстана, представлены из тесно взаимосвязанных поверхностных и подземных составляющих, наиболее уязвимых от радиоактивных и токсичных загрязнителей, и недостаточно изученных с позиций геоэкологической и эколого-гидрогеологической их оценки и типологического районирования [1-6].

По данным МЧС Кыргызстана и разработанного (Усупаев Ш.Э., Карпачев Б.М., Менг С.В., Оселедько Л.А., Мелешко А.В., Маматова К.П., Атыкеновой Э.Э. и др.) и, изданного Государственного кадастра отходов Кыргызской Республики, составленного в 2006 году, специалистами Государственного агентства по геологии и минеральным ресурсам, на территории республики, в 130 объектах размещено отходов горно-рудной промышленности в объеме 620 млн. куб. м., при этом в 2006 году 92 объектов техногенного характера в виде хвостохранилищ, соленакопителей, промстоков, горных отвалов получили подробное описание, с паспортизацией. Изданные с подробными и типизированными показателями паспорта, включены в составленный впервые Государственный кадастр отходов горно-рудной промышленности.

Радиоактивные и токсичные экологические аварии, достаточно крупного масштаба с трансграничным воздействием для сопредельных территорий и населения стран Центральной Азии происходили неоднократно на территории Кыргызстана.

Вышеуказанные радиационные и токсичные опасные объекты при условии их разгерметизации, и разрушении представляют прежде всего угрозу населению в первую очередь, через гидросферу, т.е. поверхностные и подземные воды.

Эксплуатация крупных горно-добывающих предприятий часто приводит к необратимым гидрогеологическим явлениям регионального масштаба. Нарушение исходной гидрохимической обстановки обусловлено прежде всего накоплением в поверхностных техногенных бассейнах (хвосты- и шламохранилищах, прудах-отстойниках и т.п.) рудничных и технических вод, сопутствующих горному производству [1-6]. В этом же направлении действует поступления загрязненных вод с поверхности, нарушенной горными и строительными работами (в частности складированием отвалов), или из старых горных выработок, а также инфильтрация вод естественных водоемов и водотоков. Кроме того, загрязнение подземных вод происходит и непосредственно через атмосферу в результате выброса продуктов деятельности горнопромышленных предприятий.

Общая площадь территории отчужденной техногенными месторождениями и которая нанесла прямой вред окружающей среде горнодобывающими предприятиями составляет только в пределах Кыргызстана 3700 гектаров. В бассейнах рек Нарын-Сырдарья только на территории Кыргызстана размещено 14 объектов горнодобывающей промышленности. Объем твердых отходов, содержащихся в отвалах хвостохранилищ этих объектов превышает 550 млн. м. куб.

Анализ геоэкологических последствий добычи, переработки урановых руд и загрязнения водотоков в бассейне реки Сырдарья, выполненный ведущими специалистами Института геомеханики и освоения недр национальной академии наук Кыргызской Республики, показывает, что при проектировании и размещении хвостохранилищ и отвалов горного производства не достаточно учитывалось тектоника и сейсмичность региона, не проводились предварительные гидрогеоэкологические и инженерно-геологические изыскания. В большинстве случаев, размещение хранилищ отходов горно-рудного производства осуществлялось без учета экологических последствий исходя из сиюминутной экономической выгоды, вблизи заводов и шахт, без санитарных зон и зон безопасности, отделяющих жилью от рудников.

За истекшие десятилетия и до настоящего времени, отсутствием надлежащего обращения с горно-рудными отходами, состояние большинство хвостохранилищ и отвалов, находящихся в зоне влияния опасных техногенных процессов не только весьма неудовлетворительны, но и зачастую находятся в критически опасном положении. Прогрессирующая эрозия тел намытых ограждающих дамб, имевшие место во второй половине 20-го века. Неоднократные разгерметизации и разрушения защитных и дренажных сооружений хвостохранилищ в совокупности с отсутствием надзора, усугубили ситуацию с экологической точки зрения как бедственную до кризисной.

Межгорные впадины Кыргызстана, являются резервуарами (хранилищами) подземных вод и, как правило имеют в отношении их геофильтрационных свойств трехэтажное структурно-гидрогеологическое строение.

**Нижний** геофильтрационный этаж, представлен горными сооружениями каледонского и герцинского возраста, залегает на различных глубинах от 100-2000 до 5000 метра, в пределах развития артезианских межгорных бассейнов. Поверхностные воды в условиях затрудненного водообмена, не поступают в достаточных для формирования естественных запасов, в пределы развития артезианских бассейнов. Основным геофильтрационным путем загрязнения третьего структурного этажа, являются разновозрастные и делящиеся на различные ранги, именно водоносные разломы.

**Средний** структурно-гидрогеологический этаж, имеет развитие в большинстве межгорных впадин Кыргызстана, мощности континентальных преимущественно красно-бурых по цвету молассовых отложений варьируют от 1000-4000 до 5000 метров. Средний этаж, является вмещителем термо-минеральных подземных вод. К геофильтрационной особенности среднего гидрогеолого-структурного этажа, относится развитие трещинных и порово-трещинных вод находящиеся в прослоях и линзах песчаников, гравелитов и конгломератов. Риск загрязнений подземных вод третьего структурно-гидрогеологического этажа, с позиций экологической гидрогеологии более высокий, по сравнению с нижним этажом.



**Верхний** (третий) структурно-гидрогеологический этаж, распространен во всех межгорных впадинах Кыргызстана, содержит в себе основные запасы и ресурсы подземных вод, преимущественно сложен разновозрастными аллювиально-пролювиальными генетическими комплексами пород четвертичного возраста. Верхний этаж, является наиболее уязвимым к радиоактивным и токсичным загрязнителям, вследствие, его достаточно высокой геофильтрационной проницаемости и соответственно слабой его защищенности/

К крупнейшим экологическим авариям в том числе радиоактивного характера, произошедшим на территории Кыргызстана с трансграничным воздействием относятся:

1. В Джалал-Абадской области, районе города Майлуу-Суу 15 апреля 1958 года, в результате синхронного проявления чрезвычайных ситуаций в виде сильного ливневого дождя и землетрясения, потеряла устойчивость и практически мгновенно была разрушена дамба хвостохранилища №7. В реку Майлуу-Суу было выброшено в виде радиоактивного селевого потока опасные вещества объемом до 600 тыс. куб. метров, которые распространились на расстояние 40 км. вниз по течению трансграничной реки несущей воды в густонаселенную Ферганскую долину. До настоящего времени последствия экологической аварии не ликвидированы. В Ферганской долине проживает около 4 млн. человек. В хвостохранилищах в настоящее время в текучем состоянии находятся измельченные диаметром менее 0,05 мм., известковистый илистый грунт с повышенным содержанием кремния, меди, хрома. Мощность дозы гамма-излучения на глубине 0.5 метра на хвостохранилищах и отдельных участках достигает до 2500 мкР/час.

По оценкам Торгоева И.А., Алешина Ю.Г. (2001 г.) общий объем радиоактивных выбросов может достигнуть до 1 млн. куб.метров, с суммарной активностью радиоактивно загрязненных земель на площади около 300 кв. км., до 10 тыс. Кюри. В 1994 году в результате активизации оползня выше завода Кыргызэлектроизолит, было перекрыто русло реки Майлуу-Суу. При этом, в реку было сброшено хвостохранилище №17, с объемом радиоактивных веществ до 1 000 куб. метров. Одновременно в реку попали заводские емкости с токсичными веществом-эксапоном, которое образовало ядовитое облако, распространившееся на десятки километров. Вода из хвостохранилища в связи с тем что имеет гидрокарбонатный состав, позволяет мигрировать урану на расстояние от 30 до 80 км. В районе расположения хвостохранилищ и горных отвалов близ города Майлуу-Суу, естественный расход по родниковому стоку составляет 162 куб. метров в секунду, а модуль подземного стока составляет 0,07 л/сек.

С позиций экологической гидрогеологии, на площади 4200 кв.км., гидравлическая характеристика водоносных комплексов, представлена безнапорными трещинными и порово-трещинными водами

2. В Чуйской области, 1959 году в районе города Кара-Балта, в результате размыва дамбы хвостохранилища, в ирригационную сеть и сельскохозяйственные поля были выброшены радиоактивные вещества. Поскольку поливные воды в конечном итоге попадают в региональный базис эрозии, т.е. реку Чу, последствия связанные с трансграничной миграцией радионуклидов до сих пор не достаточно исследованы. Экспозиционная доза гамма-излучения за складированных радиоактивных отходов на площади 273 га., и объемом 34.5 млн. куб. метров варьирует от 100 до 1350 мкР/час.

На вышеприведенной территории, на площади до 200 кв. км, естественный расход воды по родниковому стоку составляет 28,2 куб. м. секунду, а модуль подземного стока составляет 8.2 литра в секунду.

3. В Чуйской области, районе п. г. т. Ак-Тюз, с 9 по 14 декабря 1964 года от воздействия землетрясения интенсивностью 5 баллов, за счет эффекта приращения балльности до 6.5-7 баллов, а также в связи с обводненностью и увлажненности отходов, произошло резкое разупрочнение удерживающей радиоактивную пульпу грунтовой перемычки. Из хвостохранилища №2, по руслу реки Кичи-Кемин выброшены объемом 680 тыс. куб. м., торий содержащие радиоактивные пески, которые покрыли на площади около 50 кв. км., Кичи-Кеминскую долину, распространяя загрязнения по руслу реки до Чу. Под техногенными радиоактивным селевыми материалами в виде ила и песка на расстоянии до 20 км. шириной и 40 км. длиной, до сих пор покрыта слоем от 5 до 60 см., сельскохозяйственные площади. Измерения радиоактивности произведенные в 1991 году показали заражение от 70 мкР/час до 100 мкР/час на расстоянии от 1 до 2,5 км. от дамбы хвостохранилища. На вышеприведенной территории, с позиций экологической гидрогеологии, на площади 1200 кв. км, и в том числе в районе п.г.т. Актюз, естественный расход по родниковому стоку составляет 165 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,14 л/сек.

4. В Иссык-Кульской области в районе п. г. т. Каджи-Сай в 1.5 км. от берега озера Иссык-Куль, размещается хвостохранилище покрытое частично золо-отвалами. На глубине 2-3 метра радиоактивность составляет до 4140 мкР/час. На исследуемой территории, на площади 4190 кв. км. естественный расход по родниковому стоку составляет 1340 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,32 л/сек.

5. В Жалал-Абадской области, в районе поселка Сумсар расположен с разрушенной от эрозионных процессов дамбой, хвостохранилище полиметаллических руд содержащая соли тяжелых металлов (свинец, цинк, медь, кадмий). В результате разрушенного состояния дамбы, систематически происходят процессы выноса песков содержащих до 329 ПДК кадмия по руслу реки вниз по территории Кыргызстана в густонаселенную Ферганскую долину. На исследуемой территории, на площади 6380 кв. км. естественный расход по родниковому стоку составляет 793 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,11 л/сек.

6. В Нарынской области, районе поселка Мин-Куш, расположены 4 урановых по составу хвостохранилища. Вблизи одного из хвостохранилищ Туяк-Суу расположенного в русле одноименной реки (приток реки Минкуш), с левого борта активно развивается оползень перегораживающий русло реки, с угрозой формирования запрудного озера способного до прорыва разрушить и размыть тело радиоактивного хвостохранилища. На исследуемой территории, на площади 5600 кв. км, естественный расход по родниковому стоку составляет 5680 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 1.1 л/сек.

7. В Нарынской области расположено в долине реки Арабель хвостохранилище золотосодержащих цианидов принадлежащее Кумторскому золото-рудному предприятию. Емкость хвостохранилища составляет 110 млн. куб.

метров, где в условиях многолетней мерзлоты, в результате положительного по температуре поступления отходов, имеет место разупрочнение удерживающей дамбы с эффектами оттаивания грунтовых толщ под экологически опасными для бассейна реки Нарын веществами. На исследуемой территории, на площади 3900 кв. км, естественный расход по родниковому стоку составляет 270 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,07 л/сек.

7. В Джалал-Абадской области, в районе поселка Шекафтар, рядом с рудником по добыче урана, расположены в не рекультивированном состоянии 8 отвалов горных пород, объемом около 700 тыс. куб. метров, непосредственно вблизи жилых домов, садов и огородов. Мощности радиоактивности на поверхности горных отвалов составляют 85 мкР/час. В трех хвостохранилищах размещено в долине реки Сумсар-Сай, в непосредственной близости границы Кыргызстана с Узбекистаном, до 3,65 млн. куб. метров отходов содержащие соли тяжелых металлов. В аномально увлажненный и водообильный 1994 год, в результате активизации эрозионных процессов, была разгеметизирована и полностью разрушена расположенная на правом борту реки Сумсар-Сай дамба хвостохранилища №1. По данным республиканской Санитарно-эпидемиологической станции, содержание марганца вниз по течению реки выше ПДК в 9 раз, а кадмия 320 раз. Ветровой эрозией мелкие фракции частиц содержащие радиоактивные вещества выносятся из территории горных отвалов в прилегающие местности. На исследуемой территории, на площади 1770 кв. км. естественный расход по родниковому стоку составляет 58 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,033 л/сек.

8. В Баткенской области, районе поселка Кадамжай расположено эксплуатируемое сурьмяным комбинатом, хвостохранилище объемом 4.4 млн. куб. метров, а также 7 карт-накопителей. Источники загрязнения содержат сурьму, мышьяки другие вредные химические вещества. По склону от хвостохранилища протекает река Ак-Суу в направлении густонаселенной Ферганской долины. Землетрясения, селевые и эрозионные процессы и явления. Повышают риски возможной разгерметизации и разрушения дамбы хвостохранилища. На исследуемой территории, на площади 600 кв. км. естественный расход по родниковому стоку составляет 71 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,12 л/сек.

9. В районе расположения Чаувайского металлургического завода, в накопителях промышленных стоков, на отвале огарков, накопились загрязненные воды с высоким содержанием ртути. Загрязнители по реке Чаувай из территории Кыргызстана создают риск выноса опасных ингредиентов в густонаселенную Ферганскую долину. На исследуемой территории, на площади 4580 кв. км. естественный расход по родниковому стоку составляет 6380 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 0,14 л/сек.

10. В Чуйской области, в районе поселка Орловка, расположены не рекультивированные отходы Буурдинского хвостохранилища, содержащие редкоземельные элементы, цирконий, торий, свинец, цинк и кадмий, которые представляют угрозу в связи миграцией загрязнителей по реке Беркут в реку Чу. На исследуемой территории, на площади 2050 кв. км, естественный расход по родниковому стоку составляет 220 куб. м. секунду, модуль подземного стока равен 1.0 л/сек.

В городе Балыкчи в районе складов Сельхозхимии, где часть минеральных удобрений хранится под открытым небом, концентрации вредных здоровью человека веществ достигают катастрофических величин: нитрат – ион – 47,0; 51,0 – 1575,0 ПДК, фосфор – 120,0; литий – 120,0; барий – 40,0; стронций – 13,5; медь – 10,8; молибден - 1,4 ПДК. В различной степени разубоженности и с значительными показателями минерализации, растворимые формы удобрений за счет инфильтрации мигрирует подземным потоком достигая берега озера, привнося в водоем вредные ингредиенты.

Обеспокоенность вызывает глобальное и региональное потепление климата, которое может отрицательно сказаться на устойчивости хвостохранилища, повлечь за собой криогенные гляциальные процессы с опасными экологическими последствиями. Кроме того, существует опасность прямого загрязнения окружающей среды при складировании, транспортировке и захоронении высокотоксичных веществ, используемых в горнодобывающем производстве.

**Вертикальная миграция долгоживущих радионуклидов.** Первое время после попадания на поверхность земли радионуклиды концентрируются в верхних горизонтах (0-20 см) и со временем включаются в миграционные процессы, постепенно уменьшаясь по глубине. Более выраженное увеличение содержания радионуклидов в верхней части почвенного профиля наблюдается в почвах с хорошо выраженной подстилкой и дерниной. При этом их основное количество сосредоточено в тонкой гумусированной прослойке. В таких почвах, как песчаная, суглинистая, черноземно-луговая, чернозем, наблюдается некоторое увеличение содержания радионуклидов в верхней части горизонта. Миграция радионуклидов по почвенному профилю происходит, в основном, в результате одновременно протекающих процессов: диффузии и конвективного переноса с гравитационным током воды. При исследовании путей миграции радиоактивных и токсичных загрязнителей выделяются два пути их транзита от источника загрязнителей к территориям заражения.

**Горизонтальная миграция радионуклидов.** Процесс горизонтального перераспределения радионуклидов можно разбить на две условные стадии. В течение первых двух лет преобладает ветровая миграция радиоактивных веществ, а в последующем миграция с талыми водами и водным стоком. Значительной миграции способствовали сильные ветры при их скорости 10-12 м/сек. Значительный перенос радиоактивных веществ с загрязненной территории продолжается вплоть до образования устойчивого снежного покрова. В зимние месяцы миграция с загрязненной территории на большие расстояния не наблюдаются. Весной этот процесс возобновился в меньших масштабах до появления растительного покрова. Прекращению миграции способствуют также работы по перепашке земли. Радиоактивная пыль поднимается восходящими потоками воздуха на большую высоту и переносится на значительные расстояния. Преимущественное значение в перераспределении химических элементов имеет поверхностный сток с водой. Степень горизонтальной водной миграции зависит от химических свойств самих радиоактивных элементов, от водно-



физических и обменных свойств почвы, от прочности фиксации радионуклидов частицами почвы, а также от сезона, в который произошло загрязнение радионуклидами земной поверхности. В настоящее время, в рамках проекта Всемирного банка МЧС КР на примере радиоактивных отходов в размещенных в районе города Майлуу-Суу, уже перенесен 5 горный отвал, ведется перенос отвала №1 и рекультивация 2-го отвала горных пород. В число главной работы, по проекту Всемирного Банка отнесен перенос хвостохранилищ № 3 и 18 на безопасное место. Работы предусматривается завершить в течение 2 лет. При этом, отсутствуют данные о воздействии радиоактивных веществ на окружающую среду, за указанный выше период их перемещения из одной хвостовой емкости в другое хвостохранилище.

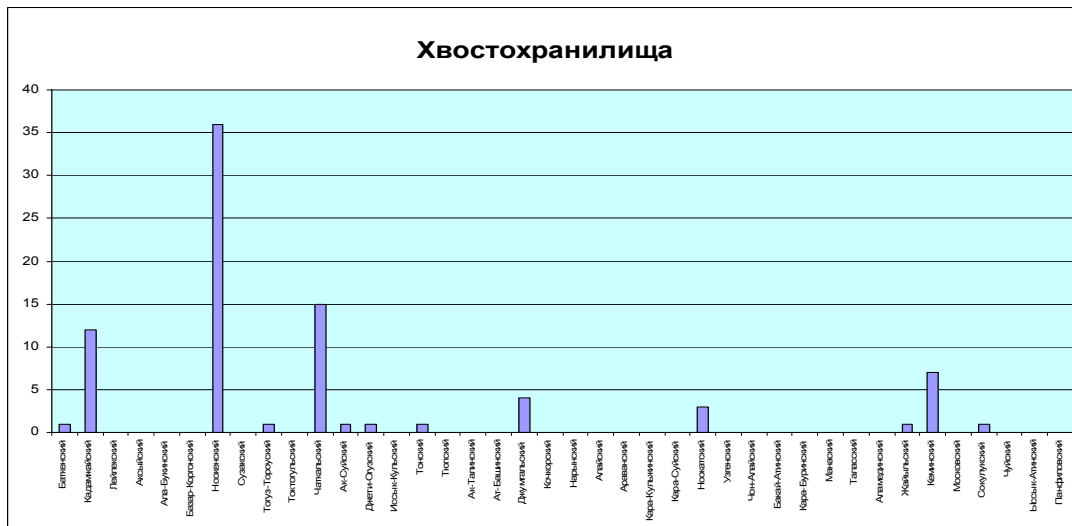


Рис.1. Гистограмма порайонного распределения количества опасных хвостохранилищ и горных отвалов.

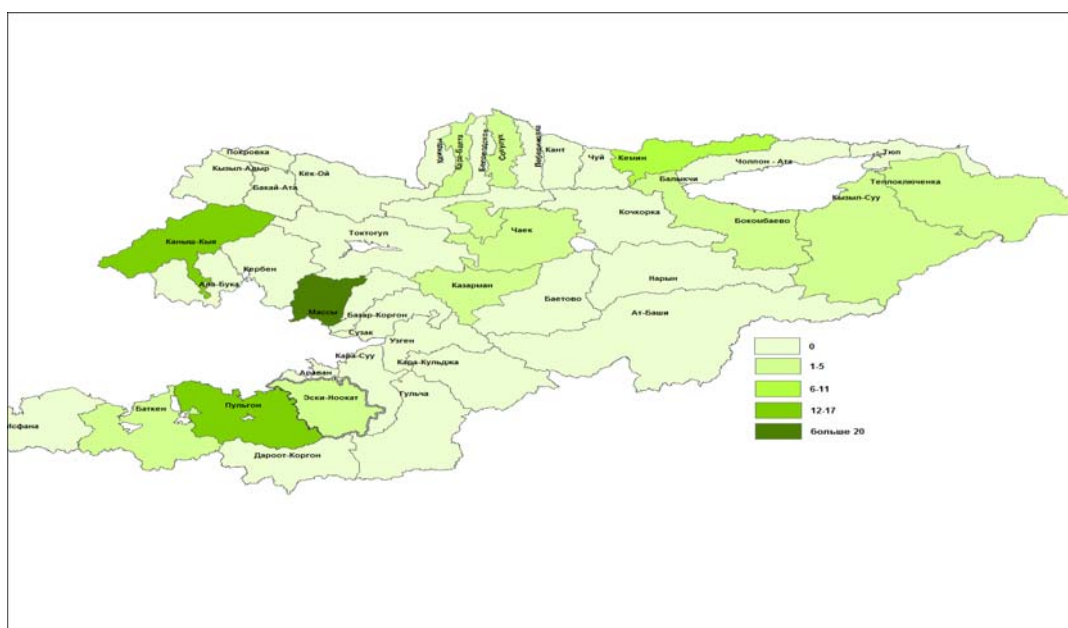


Рис.2. ИГН Карта порайонного распределения количества опасных хвостохранилищ и горных отвалов

В целях разработки основы, и составления карты типологического геоэкологического и эколого-гидрогеологического районирования предлагается использовать ранее составленные, тематически коррелируемые друг с другом следующие картографические материалы: 1. Карту радио-экологической обстановки Кыргызстана (Менг С.В.). 2. Карту геохимических полей Кыргызской Республики (Министерство природных ресурсов). 3. Обобщенную гидрохимическую карту Кыргызской Республики (Малышева Ф.А.). 4. Карту размещения радиоактивных и токсичных опасных хвостохранилищ и горных отвалов на территории Кыргызстана (МЧС КР). 5. Карту естественных ресурсов подземных вод Кыргызстана (под редакцией Прессмаа Э.Д.). 6. Гидрогеологическую карту Кыргызстана (Министерство природных ресурсов).

По данным Карпачева Б.М. и Менг С.В. (2000 г), территория Кыргызстана по радиационно-экологическому состоянию, подразделена на: а). Имеющие различную естественную дозовую нагрузку гамма-излучения. б). Площади техногенного загрязнения. По карте геохимических полей территории республики разделена на 17 площадей по преобладающему распространению парагенетических групп химических элементов. На основе карты обобщенной гидрохимической ситуации на территории Кыргызстана, были выделены 15 гидрогеохимических зон, где приводятся

как единичные, так и суммарные показатели загрязнения территории. На обобщенной гидрохимической карты Малышева А.Ф. практически на территории межгорных впадин и окружающей их горной системы всех семи административных областей Кыргызстана, имеет место превышение суммарного показателя загрязнения в ПДК например: в Таласской области от 13 до 109 раз, в Чуйской области от 27 до 376, в Иссык-Кульской области от 5 до 249, в Нарынской области от 13 до 134, в Баткенской области от 12 до 625, в Ошской области от 13 до 115, в Джалал-Абадской области от 15 до 122.

На рисунке 3 видно, что по количеству источников радиационных и токсически опасных объектов представляющих угрозы возможных гидро-экологических аварий, административные области Кыргызстана располагаются в уменьшающемся следующем порядке: Джалалабадская – Баткенская – Чуйская – Нарынская – Иссык-Кульская – Ошская – Таласская.

По показателям площади распространения радиационных нагрузок естественной гамма-активности, исследуемые территории административных областей распределены в уменьшающемся порядке в следующей последовательности: Чуйская – Иссык-Кульская – Таласская – Баткенская – Джалалабадская – Нарынская – Ошская.

Приведенные оценки геоэкологического и эколого-гидрогеологического состояния природно-антропогенной среды, показаны в кружочках поставленных на карте (рисунке) 3 возле каждой конкретной административной области. Римскими цифрами (Рис.3) показаны занимаемые места, по объектовому количеству отходов горно-рудной промышленности, одновременно площади с черным крапом указывают перспективные на поиск радиоактивных руд площади, а арабскими цифрами указаны места по уменьшению площадей занимаемые по естественной гамма-активности.

Исследования проводимые для составления основ гидрогео-экологической и эколого-гидрогеологической карт показывают, что интрузивные горные породы Кыргызстана, характеризуются самыми большими показателями гамма-активности, в среднем значения которой составляют 20-36 мкР/ час. При этом отдельные интрузивные массивы, такие как Сарыджаз, Ак-Олон и ряд других имеют повышенную естественную гамма-активность до 70-120 мкР/час, а горные породы более древнего возраста имеют меньшую радиоактивность, чем более молодые.

В осадочных породах, радиоактивность естественная ниже, чем в магматических. Если в магматических породах их содержание изменяется от 0,0004 до 0,0063 % урана, 0,0015% до 0,006% тория, то в осадочных отложениях соответственно в сланцах урана-0,0004%, тория 0,0011%, в песчаниках урана 0,0003%, тория-0,01%, в известняках урана 0,00014%, тория 0,00016%.

В метаморфических породах, имеющих гамма-активность от 5 до 22 мкР/час, содержания радиоактивных пород несколько ниже, чем в магматических.

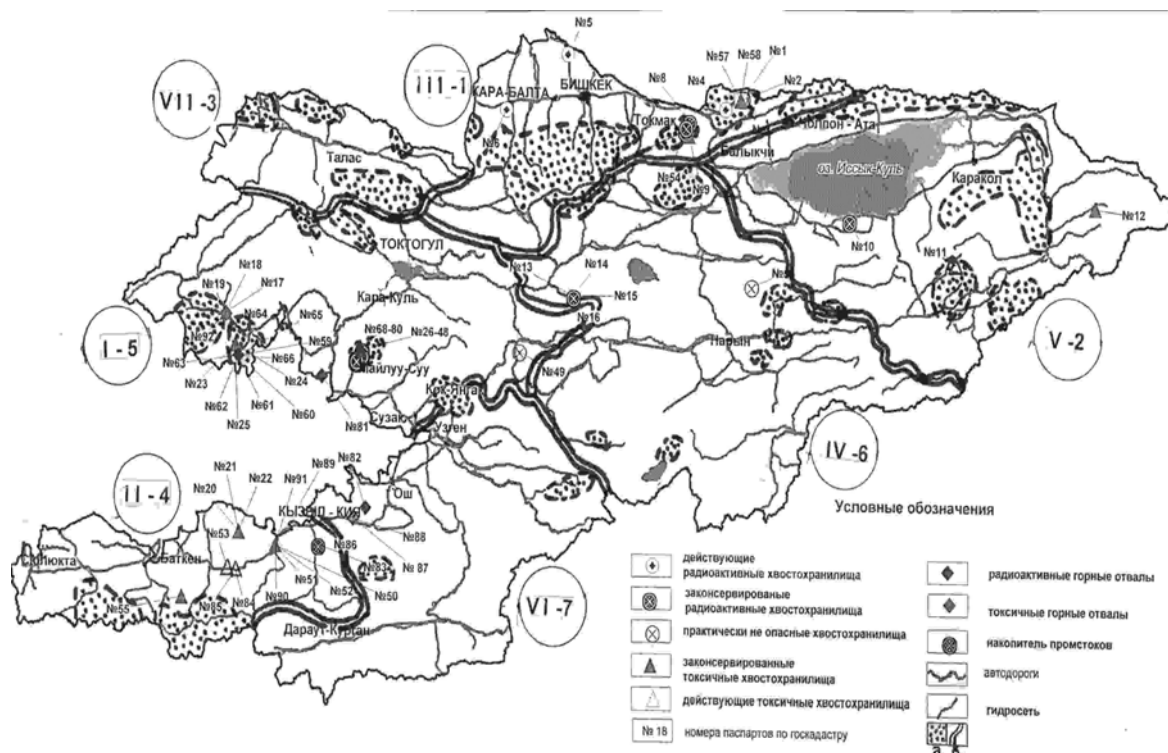


Рис.3 Карта-схема типологического геоэкологического и эколого-гидрогеологического районирования на территории административных областей Кыргызстана.

В техногенных месторождениях геологические запасы благородных, цветных и редких металлов содержащиеся в хвостохранилищах, составляют сотни тысяч тонн. По предварительным расчетам в отходах горно-рудного производства накоплены следующие полезные компоненты: золота – 41,7 т; серебра – 84 т; цинка – 66 тыс. т; сурьмы – 55 тыс. т; свинца – 36 тыс. т; флюорита – 33 тыс. т; бария – 23 тыс. т; ртути – 12 тыс. т; вольфрама – 11 тыс. т; меди – 6,2 тыс. т; редкоземельные элементы – 1,2 тыс. т; теллура – 350 т; кадмия – 189т. В отвалах бедных и

некондиционных руд и огарков содержатся полезные компоненты: флюорита – 72 тыс. т; сурьмы – 4,2 тыс. т; свинца – 2,0 тыс. т; молибдена – 122 т; ртути – 82 т; окиси бериллия – 28 т и других компонентов (пирит, мышьяк, сера и т.д.).

Рисунке. 4 представлена разработанная Усупаевым Ш.Э. (2011г.) ИГН карта закономерностей размещения радиоактивных и токсичных отходов на территории Кыргызстана и трансграничных районах с государствами Центральной Азии. Из карты ИГН следует, что хвостохранилища и горные отвалы, находятся в зонах риска от активных разломов, линеаментов. Землетрясений. селей.



Рис. 4. ИГН карта закономерностей размещения радиоактивных и токсичных отходов на территории Кыргызстана и трансграничных районах с государствами Центральной Азии (по Усупаеву Ш.Э, 2011 год).

По данным специалистов Карабалтинского горно-рудного комбината принципиально необходимо добиться извлечения урана и тяжелых металлов до уровня ее природных кларков. Например, себестоимость получения редких металлов из отвалов на 60% ниже, по сравнению с извлечением из промышленных руд. В сфере организации экологически безопасных, мало- и/или безотходных способов вторичной переработки техногенных месторождений, в настоящее время учеными Института химии и химической технологии Национальной Академии наук разработан ряд методов извлечения сурьмы, мышьяка из отходов Кадамжайского сурьмяного комбината.

1. По данным исследования Слюнчева О.М. и др. Новая технология отличается тем, что перед радиационной обработкой в раствор вводят пероксид водорода в количестве обеспечивающем соотношение ПАВ:  $H_2O_2=1$ : (0,3-0,4), в процессе радиационной обработки дополнительно вводят пероксид водорода 2 – 3 равными долями через каждые 100 кг с тем, чтобы обеспечить конечное соотношение ПАВ:  $H_2O_2=1$  : 1,2, а после радиационной обработки концентрат упаривают с получением кубового остатка, который направляют на дальнейшее отверждение, и конденсата, который смешивают с очищенным после ультрафильтрации моющим раствором, пригодным для повторного использования. Вторая модификация относится к случаю присутствия в обрабатываемом растворе радионуклида цезия, когда перед ультрафильтрацией в раствор предварительно вносится добавка ферроцианида никеля или меди.

2. Исследования Шестоперова И.Н. и других соавторов показали. Новая технология отличается тем, что в качестве минералоподобного материала используют по меньшей мере, одно соединение, выбранное из группы: пироксен, пироксиликат, гранат, титаносиликат, а блок имеет поликристаллическую, стеклокристаллическую или аморфную структуру. В вариантах монолитного блока указаны возможные замещения указанных компонентов другими соединениями. Предложены следующие соотношения компонентов блока, мас.% Окислы компонентов радиоактивных отходов - 3 – 60 Минералоподобный материал –Остальное.

3. По данным исследований Шестоперова И.Н., Смелова Т.В., Мусатова Н.Д., Агеенкова А.Г., Комарова Э.В., Демина А.В., Кривякова О.А., сущность изобретения заключается в способе отверждения жидких радиоактивных отходов включает их подготовку, концентрирование и смешивание с флюсующими добавками, нагрев полученной смеси, плавление, слив расплава в емкости, охлаждение расплава и формирование блоков. Концентрирование осуществляют распылительной сушкой и кальцинацией при 600-800°C. В качестве флюсующих добавок используют минералообразующие соединения в количествах, которые позволяют получить блоки в виде минерало подобного материала, выбранного из группы минералов: Эгирин, Жадеит, Эгирин-авгит, Арфведсонит, Ортит, Шерлит, Ловчоррит, Андрадит или их смеси. Синтез этого материала осуществляют плавлением при 1250-1800°C и при непосредственном воздействии индукционного поля на расплав.

4. Исследования Андрианова А.К., Кривобокова В.В., Лаврова А.В., Ильина В.Г., Сдержикова Ю.А., показывают, что переработки жидких радиоактивных отходов (ЖРО), а именно способом концентрирования ЖРО и методом упаривания имеет перспективы. Сущность изобретения заключается в концентрировании отходов

упариванием, при этом процесс осуществляют путем подачи ЖРО в глицерин при их соотношении в зоне упаривания 1:9 - 1:1 при 105-150°С.

5. По исследованиям Соболева И.А., Лифанова Ф.А., Кобелева А.П., Князева О.А., Цвешко О.Н., переработка радиоактивных отходов производится путем их перевода в стеклообразное состояние. Технический результат: одновременное повышение удельной производительности способа, а также снижение суммарного количества присутствующих в отходящих из охлаждаемого металлического индукционного плавителя газах летучих форм радионуклидов.

6. По материалам исследования Пашина В.М., Копченова В.П., Струева В.П., Вишнякова Ю.М., Кильдеева Р.И., Малышева С.П., Хорошева В.Г., обезвреживания жидких радиоактивных отходов (ЖРО) производится путем сокращения энергозатрат и трудоемкости в процессе преобразования содержащейся в них воды и в лед вымораживанием. Получение очищенной воды, удовлетворяющей санитарным нормам, и концентрированного раствора ЖРО, пригодного к утилизации, существующими методами кондиционирования. Процесс замораживания в емкости выполняют при одновременном перемешивании ЖРО с линейной скоростью не более 0,8 м/с и нагревании внутреннего дна этой емкости при поддержании температуры в интервале +0,5 - +1°С. Замораживание начинают осуществлять при достижении среднесуточной отрицательной температуры по крайней мере -3°С в течение не менее 48 ч

7. Метод многоэтапного и, круговоротного перевода извлекаемых полезных компонентов в раствор с помощью дифференцированно-дистиллированной по степеням очищенности воды, с использованием заданных геохимических и геофизических барьеров осаждения и получения высокопробных по чистоте химических элементов.

#### Выводы

1. Проведены комплексные исследования, позволившие качественно оценить экологические функции трех наиболее развитых структурно-гидрогеологических этажей, верхняя из которых, является наиболее уязвимой в связи с слабой эколого-гидрогеологической его защищенности.

2. Составлена схематическая карта типологического эколого-гидрогеологического районирования территории Кыргызской Республики и трансграничных стран Центральной Азии.

3. На территории Кыргызстана, накоплены требующие специализированного до-изучения с позиций их вторичной переработки, техногенные месторождения радиоактивных и токсичных отходов горно-рудных предприятий, которые целесообразно осваивать с помощью мало и/или безотходных экологически безопасных способов комплексного извлечения полезных компонентов. С позиций гидрогео-экологии, внедрение новых технологий мало- и безотходного подхода позволит резко снизить риски возможных радиационных экологических аварий и катастроф. Проведенный обзор используемых технологий вторичной переработки, свидетельствуют о имеющихся потенциалах и перспективных разработках, среди которых особое место принадлежит технологиям с использованием высокой степени очистки воды. При расчете всех положительных эффектов (медицинский, социальный, экологический, экономический, политический) с учетом выгоды от продажи извлеченного урана и металлов, перевод горно-перерабатывающих производств к комплексным безотходным технологиям становится целесообразной и самокупаемой.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Поляков В.И. Экзамен на Homo sapiens. От экологии и макроэкологии... к МИРУ. Саранск. Изд. МГУ. 2004г. 496с.
2. Поляков В.И. Ядерная энергия без РАО. РАН: «Энергия» №7, 2001, с. 8
3. Поляков В.И., Буквич Б.А. Экологическое решение проблемы обращения с жидкими радиоактивными отходами. «Радиационная безопасность: обращение с РАО». VII Межд. конф. С.-Пет. 2004. 364 с.
4. Радиоактивность и радиоактивные элементы в среде обитания человека. II Межд. конф. Томск. 2004. 772с.
5. Усупаев Ш.Э., Карпачев Б.М., Менг С.В., Оселедько Л.А., Мелешко А.В., Маматов К.П., Садабаева Ч., Атыкенова Э.Э., Мозговой А.И., Аманова М.Т., Брежнева В.А. Государственный кадастр отходов горной промышленности Кыргызской Республики (хвостохранилища и горные отвалы).- Бишкек: 2006.- 345 с.
7. Б.Д. Молдобеков, Ш.Э. Усупаев, А.К. Сарногоев Нетрадиционные экологические угрозы на территории Кыргызской Республики. Материалы Международного семинара «Экономическая и экологическая безопасность Кыргызстана». Бишкек, 2000 г. (Internet) (0,8 п.л.)
8. Усупаев Ш.Э., Молдобеков Б.Д., Сарногоев А.К., Мелешко А.В., Омуралиева Б.И., Садабаева И.О. Законсервированные хвостохранилища и горные отвалы как источник возможных экологических катастроф в Кыргызстане. Материалы научно-практической конференции «Окружающая среда и здоровье». Бишкек, 2000 г. (0,4 п.л.)
9. Айтматов И.Т., Торгоев И.А., Алешин Ю.Г. Геоэкологические проблемы в горнопромышленном комплексе Кыргызстана. Журнал: Наука и новые технологии №1-1997. с.129 – 137
10. Айтиалиев А.М., Мелешко А.В., Усупаев Ш.Э. и др. Инструкция по подготовке к реагированию населения и местных сообществ, школьников и студентов к стихийным бедствиям. Издательство ДЭМИ, Бишкек, 2006г. 95 с.

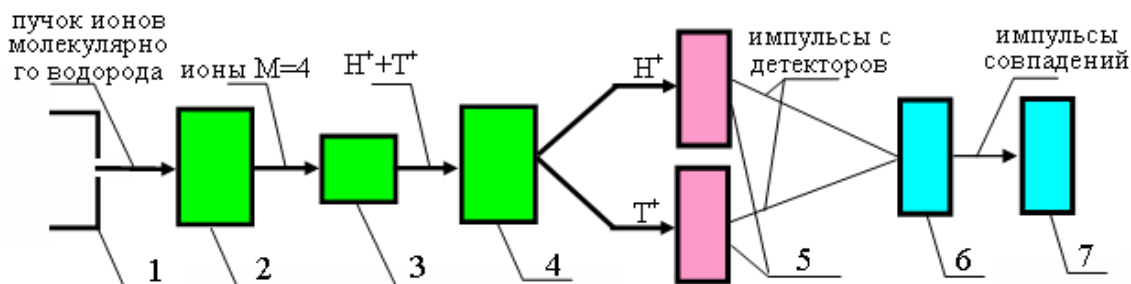
Алдияров Н.У., Мить А.Г., Назаренко Л.М., Якушев Е.М.  
Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

### 1. Физические основы нового масс-спектрального метода определения трития

Изотоп водорода - тритий принадлежит к числу наиболее интересных изотопов. Известно, что естественный баланс концентрации трития в водном бассейне Земли поддерживается в среднем на уровне  $\sim 10^{-18}$  или 0,12 Бк на 1 л воды [1]. Особую важность имеют высокочувствительные измерения концентраций трития для экологических и радиобиологических исследований, для изучения биологических структур на клеточном и хромосомном уровне. Изучение малых концентраций трития в подземных водах может дать важную информацию о наличии или отсутствии его миграции и возможных миграционных путях.

Существующие методы прецизионного измерения трития - масс-спектральный метод, метод ускорительной масс-спектрометрии, радиометрический метод и др. не обладают достаточной универсальностью и чувствительностью, особенно в отношении измерения ультрамалых концентраций. При этом на проведение анализов необходимы большие временные затраты. Так, при  $^3\text{He}$ -масс-спектрометрии [2] время, необходимое для проведения одного анализа составляет около месяца. Метод ускорительной масс-спектрометрии (см., напр. [3]) характеризуется не очень высокой чувствительностью (около  $10^{-14}$ ) и значительной стоимостью анализов, связанной с использованием сложной и дорогостоящей ускорительной техники. Ускорительных установок, реализующих различные модификации метода ускорительной масс-спектрометрии измерения трития, в мире насчитывается лишь несколько. Дороговизна этого способа сужает область его применения. Отметим, что в процессе некоторых технологических циклов, например при некоторых атомных технологиях, в ядерной энергетике, часто требуется проведение экспрессных измерений изотопных концентраций водорода в реальном времени.

В настоящей работе обсуждается метод двойного масс-спектрального анализа для определения трития. Основной особенностью метода является ускорение ионов после первого масс-сепаратора и использование эффектов диссоциации молекулярных ионов при прохождении через тонкие углеродные пленки (алмазоподобные фольги) с последующей сепарацией по энергии фрагментов молекул, энергия которых после диссоциации пропорциональна их массам. (рисунок 1).



1 - источник ионов, 2 – первый масс-сепаратор, 3 – узел дополнительной ионизации (конвертор), 4 – второй масс-сепаратор, 5 – микроканальные детекторы, 6 – система протон-тритонных совпадений, 7 – счетчик импульсов протон-тритонных совпадений.

Рисунок 1 – Блок - схема метода

Пучок молекулярных ионов водорода, вышедший из источника - 1, попадает на первый масс-сепаратор - 2, который выполняет функцию фильтра масс. Он выделяет для последующего анализа малую фракцию молекулярных ионов изотопов водорода  $\text{D}_2^+$ ;  $\text{HT}^+$ ;  $\text{H}_2\text{D}^+$  с примерно одинаковым значением  $M/Z \approx 4$ . Пучки с другим отношением массы к заряду разводятся на достаточно большие углы так, чтобы фон в окрестности анализируемого пучка ионов с массовым числом 4 от других ионов был минимальным. Выделенный пучок молекулярных ионов  $M/Z \approx 4$  направляется на узел дополнительной ионизации (конвертор) - 3. После прохождения конвертора молекулярные ионы  $\text{HT}^+$  разлагаются на отдельные фрагменты  $\text{T}^+$  и  $\text{H}^+$ , движущиеся с одинаковой скоростью, и затем сепарируются по импульсу или по энергии во втором масс-сепараторе - 4 с соответствующим полем. Ионы  $\text{T}^+$  и  $\text{H}^+$  попадают на отдельные детекторы - 5, причем для уменьшения отношения сигнал-шум эти ионы регистрируются с использованием схемы протон-тритонных совпадений - 6 счетчиком импульсов совпадений - 7.

Использование этого метода обладает двумя благоприятными особенностями. Во-первых, он не требует применения прецизионных и дорогих масс-спектрометрических установок, поскольку изотопы водорода существенно отличаются друг от друга по массам, поэтому разрешающая способность обоих анализаторов может быть не более 10. Во-вторых, использование схемы совпадений позволяет понизить фон регистрирующего устройства. Установлено, что связь между концентрацией трития  $\sigma$  в пробе, количеством зарегистрированных импульсов протон-тритонных совпадений  $N$ , временем экспозиции  $t$  и силой тока  $i_0$ , выходящего из источника ионов выражается формулой (1):

$$\sigma = \frac{e(N \pm \sqrt{N})}{2kti_0}, \quad (1)$$

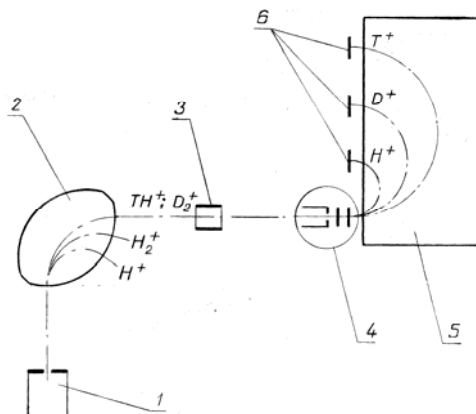
где  $e$  - заряд электрона, а  $k$  – безразмерный коэффициент, характеризующий трансмиссию ионно-оптического тракта установки, равный отношению числа зарегистрированных импульсов протон-тритонных совпадений к числу вылетевших из источника молекулярных ионов  $\text{HT}^+$ . Из приведенной формулы следует, что при использовании описываемого масс-спектрального метода (при времени измерения  $t \sim 10^4$  сек) может быть достигнут высокий предел обнаружения ультрамалых концентраций трития -  $\sigma = 2 \cdot 10^{-18}$  при весьма умеренных параметрах установки:  $i_0 = 0.001 \text{ А}$  и  $k = 0.01$ .

С целью выяснения возможностей использования углеродной пленки в качестве конвертора (мишени) для диссоциации и ионизации пучка молекулярных ионов водорода изучались потери энергии, угловое распределение и зарядовые состояния вышедших из мишени частиц в зависимости от толщины углеродной пленки и начальной энергии частиц. Отобраны наиболее достоверные теоретические и экспериментальные данные в области энергий  $\sim 10$  кэВ/нуклон падающих на мишень частиц [4]. При толщине углеродной пленки  $\sim 100 \text{ \AA}$  полуширина углового распределения составляет  $\sim 5^\circ$  градусов, потери энергии составляют  $\sim 2,5\%$  для тритонов и  $\sim 7,5\%$  для протонов. При указанной толщине мишени ионы  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}_0$ ,  $\text{H}^-$  находятся в равновесном состоянии. Концентрации отрицательных ионов  $\text{H}^-$  на порядок меньше концентраций положительных  $\text{H}^+$  и нейтральных  $\text{H}_0$  частиц, причем доля положительных ионов в пучке на выходе из мишени составляет около 25%. Приведенные теоретические и экспериментальные данные свидетельствуют о том, что практическая реализация предлагаемого метода измерения малых концентрации трития в водородосодержащих средах возможна при использовании ионных пучков сравнительно малой энергии, характерной для изотопной масс-спектрометрии.

## 2. Экспериментальное осуществление действующей модели масс-спектральной установки

Для практического осуществления установки выбран наиболее простой вариант, включающий в себя: источник положительных ионов молекулярного водорода; первый масс-сепаратор, в котором происходит выделение слаботочной компоненты молекулярного пучка ионов тяжелого водорода с массой 4 а.е.м. при низкой энергии (около 2 кэВ); узел дополнительной ионизации, состоящий из двух углеродных пленок, осуществляющий ускорение выделенного молекулярного пучка и его разложение на протоны дейтроны и тритоны; второй масс-сепаратор на основе однородного магнитного поля с полукруговой фокусировкой; микроканальные детекторы со схемой протон-тритонных совпадений.

Ионно-оптическая схема масс-спектральной установки представлена на рисунке 2.



1 - источник ионов, 2 – магнитные наконечники первого масс - сепаратора, 3- фокусирующая ионная линза, 4-узел дополнительной ионизации с ускоряющим промежутком, 5 – магнитные наконечники второго масс-сепаратора, 6- микроканальные детекторы.

Рисунок 2 –Ионно-оптическая схема масс-спектральной установки

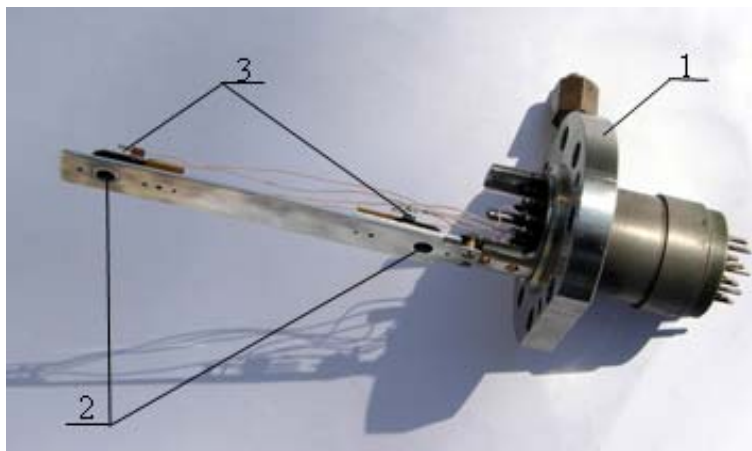
В качестве первого масс-сепаратора используется магнитная призма с радиусом центральной траектории  $r_0 = 100$  мм и углом отклонения  $\psi = 90^\circ$ . В магнитной призме слаботочная компонента потока молекулярных ионов тяжелого водорода с массой  $M4$  формируется в узкий пучок, а основной поток молекулярных ионов ионы других масс ( $M1$ ,  $M2$ ,  $M3$ ) поглощается в камере первого масс-сепаратора при низких энергиях и не должен вызывать существенного повышения фона вторичного излучения. Эта особенность призмы должна способствовать минимизации фона в окрестности пучка анализируемых ионов с массой  $M4$ .

В качестве второго масс-сепаратора используется ионно-оптическая система Демпстера [5, 6]. Достоинством этой системы является то, что в ней применяется однородное магнитное поле, обеспечивающее разделение ионного пучка по массам и пространственную фокусировку ионов каждой массы при их отклонении на угол 180 градусов. При этом положения источника и изображений всех линий масс-спектра располагаются в плоскости края полюсных наконечников, а шкала масс строго линейна. Эти свойства системы Демпстера удачно реализуются в разработанной ионно-оптической схеме масс-спектральной установки, что позволяет производить одновременную регистрацию



нескольких линий (многолучевые измерения) с реализацией системы протон-тритонных совпадений.

Были разработаны соответствующие блоки детектирующего устройства предназначенные для независимой регистрации ионов водорода  $H^+$  и трития  $T^+$  после прохождения ими второго масс-сепаратора с последующей подачей сигналов на систему протон-тритонных совпадений. Каждый из блоков состоит из пары микроканальных пластин (шевронов). Изготовленный узел шевронных детекторов на основе микроканальных пластин представлен на рис. 3.



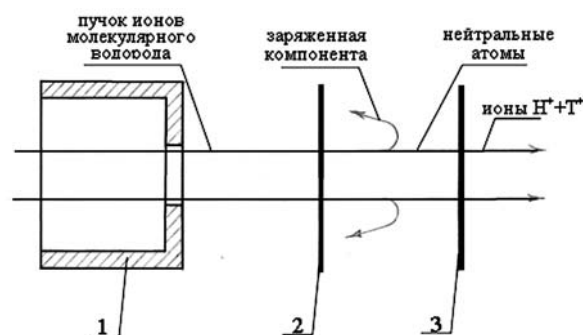
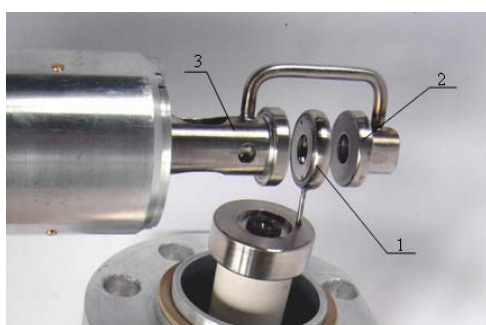
1 – Фланец с вакуумными электрическими вводами, 2 – входные окна, 3 – протонный и тритиевый микроканальные детекторы.

Рисунок 3 – Узел шевронных детекторов

Блок смонтирован на базовом фланце - 1, имеющем 12 гермовводов для подачи потенциалов на каждый из детекторов и съема соответствующих сигналов. Детекторы - 3 смонтированы на металлической пластине вдоль осевой линии базового фланца -1. На пластине имеются входные окна - 2 диаметром 10 мм. Они расположены в соответствии с положениями линий изображения водорода  $H^+$  и трития  $T^+$  в фокальной плоскости второго масс-сепаратора. В соответствии с расчетами расстояние между центрами входных окон равно 169 мм.

В качестве источника ионов использовался ионный источник с ионизацией электронным ударом. Этот источник обладает малым угловым ( $\pm 10^0$ ) и энергетическим ( $\approx 2\%$  при 2 кэВ) разбросами и обеспечивает выходной ионный ток первичных молекулярных ионов водорода значением до  $2 \cdot 10^{-6}$  А. Малый выходной ток используемого источника ионов в конечном итоге ограничил значение предела экспериментально достигнутой изотопической чувствительности созданной установки.

В узле дополнительной ионизации используется явление ионизации пучка за счет обменных взаимодействий при прохождении двух твердотельных мишеней. При энергии ионов около 10 кэВ/нуклон наиболее целесообразно в качестве мишеней использовать углеродные алмазоподобные фольги с суммарной толщиной около 100 Å, т.е. применить две пленки толщиной по 50 Å каждая (рисунок 4).



1 – кассета с первой пленкой, 2 – кассета со второй пленкой, 3 – держатель входной диафрагмы.

Рисунок 4 – Узел дополнительной ионизации в сборе и схема прохождения ионного пучка через две пленки

Первая по ходу пучка пленка находится под потенциалом ускоряющего напряжения, вторая- под потенциалом Земли. В результате прохождения первой пленки ускоренный молекулярный пучок ионов водорода разлагается на нейтральные атомы и ионы. Доля заряженных частиц составляет около 30%, оставшаяся большая часть – ускоренные до заданной энергии нейтральные атомы водорода. Нейтральная компонента пучка попадает на вторую пленку, находящуюся под потенциалом Земли, и после перезарядки подвергается дальнейшему анализу. Заряженная компонента выводится из дальнейшего анализа тормозящим полем между первой и второй пленками. Такая конструкция узла дополнительной ионизации позволяет решить сразу две проблемы: ускорение только слаботочной компоненты ионов молекулярного водорода и регистрацию ионов тяжелого водорода не по вторичным эффектам, а непосредственно по протон-тритонным совпадениям. Отметим, что наряду с указанными преимуществами это



техническое решение узла дополнительной ионизации имеет тот недостаток, что в нем имеет место некоторая потеря основного тока ионов тяжелого водорода (около 30%).

В итоге, после проведенных прецизионных работ по сборке всей аналитической части, была создана действующая масс-спектральная установка. Проведена работа по её эталонировке.

Для определения чувствительности использовались пробы воды, обогащенной тритием. Получение газообразного водорода из проб воды проводилось путем электролиза. Полученный водород собирался в специальный контейнер-сборник сильфонного типа. Средний объем контейнера составляет  $40 \text{ см}^3$ , что позволяет вести непрерывную работу прибора в течение рабочего дня. Время, необходимое для заполнения контейнера-сборника водородом, составляет 10-15 минут при расходе пробы воды не более 0,5г. Время приготовления одной пробы водорода составляет около 1 часа.

Измерения проводились при максимальном напуске водорода в рабочую камеру источника ионов. Давление в камере поддерживалось постоянным, равным  $2 \cdot 10^{-5}$  торр, что обеспечивало постоянство ионного тока  $i_0$ , на уровне  $2 \cdot 10^{-6}$  А. Экспериментально полученный предел изотопической чувствительности по тритию созданной масс-спектральной установки при ионном токе из источника ионов тока  $i_0=2 \cdot 10^{-6}$  А составил  $6 \cdot 10^{-16}$  (отношение числа атомов трития к числу атомов водорода в пробе). При такой чувствительности можно измерить предельно малую концентрацию трития 70 Бк/л с точностью до 50%, зарегистрировав 4 импульса при непрерывной работе установки в течение 6 часов. Малый выходной ток используемого источника ионов в конечном итоге ограничил значение предела экспериментально достигнутой изотопической чувствительности. При использовании ионного источника с выходным током до  $2 \cdot 10^{-3}$  А на созданной масс-спектральной установке может быть достигнут предел обнаружения трития, близкий к естественной распространенности –  $2 \cdot 10^{-18}$ .

Таким образом, получено первое экспериментальное подтверждение работоспособности нового метода измерения малых концентраций трития в водосодержащих средах, основанного на использовании эффектов фракционирования ионных пучков молекулярного водорода на тонких углеродных пленках (алмазоподобных фольгах).

#### Литература

1. A.V.Gross et all., Tritium in Nature //Science.-1951.-Vol.113. -P. 1-2.
2. Surano K.A., Hudson G.B., Failor R.A., Sims J.M., Holland R.C., MacLean S.C., Garrison J.C. Helium-3 mass-spectrometry for low-level tritium analysis //Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.- 1992.-Vol.161, №2. -P.443-453.
3. Jiang S., Cui A.Yu.Y., Zhou Z., Luo D. And Li Q. Determination of tritium using a small Van de Graaff accelerator //Nucl. Instr. and Meth. -1984.-Vol. B5. -P.226-229.
4. Алдияров Н.У., Гриднева Е.А., Коборов Н.Н., Курнаев В.А., Мить А.Г., Назаренко Л.М., Якушев Е.М. Метод определения концентрации трития с использованием эффектов диссоциации молекулярных пучков ионов изотопов водорода на тонких углеродных пленках//ЖТФ, -2011. том 81, №10. – С.60-67.
5. Dempster A.J. Electric and magnetic focusing in mass spectroscopy. -Phys. Rev. –1937. -Vol.51. –P.67-69.
6. Гликман Л.Г., Спивак-Лавров И.Ф. Ахроматичная конусовидная призма с большой угловой дисперсией по массе// Известия АН Казахской ССР, серия физико-математическая. – 1985. – Вып.2. – С.75-84.

УДК 502.7:621.039.7

### ДОПУСТИМЫЕ РАДИАЦИОННЫЕ ПАРАМЕТРЫ ТЕРРИТОРИЙ ЛУГОПАСТБИЩНОГО ЗЕМЛЕДЕЛИЯ

В. Н. Глущенко, Г. Д. Кабдрахимова, В. А. Кудряшев, А. Ж. Тулеушев  
*Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан*

#### ВВЕДЕНИЕ

При планировании жизнедеятельности на территориях необходима информация о степени радиационной опасности (радиационного риска), регламентируемой в величинах эффективной дозы. Величины эффективной дозы в настоящее время недоступны для измерения, зависят от характера использования почв и определяются достаточно сложными измерениями и расчетами в условиях реального проживания людей.

Общепринято, что эффективная доза на территории является аддитивной величиной и пропорциональна активности радионуклидов, присутствующих в окружающей среде.

Целью работ являлось определение максимальных величин измеримых радиационных параметров (мощности эквивалентной дозы, плотности потока частиц, удельные активности и т.д.), при которых возможно получение регламентируемой эффективной дозы 1 мЗв в год, то есть допустимых радиационных параметров (ДРП) территорий.

Для нормативного обеспечения работ разработана Методическая инструкция ИЯФ НЯЦ РК МИ – 03 – 13.07 – 02 – 2010 «Определение допустимых радиационных параметров территорий» [1], согласованная Комитетом Государственного санитарно-эпидемиологического надзора МЗ РК. Информация о методике в стендовом докладе «Определение допустимых радиационных параметров территорий».

В качестве следующего этапа работ обоснованы и представлены в форме Отчета ДРП характерных для территорий СИП и зон влияния ядерных установок техногенных радионуклидов в условиях лугопастбищного животноводства.

В работе использованы рекомендации Доклада NRPB W36 National Radiological Protection Board Great Britain, W B Oatway и S F Mobbs [2] и Руководства по радиометрической съемке и радиационному обследованию территорий (MARSSIM) [3], разработанного комитетом представителей соответствующих государственных Агентств США (EPA, NRS, DOE, DOD) под председательством Colleen F. Petullo (декабрь 1997).

Расчет влияния пищевых цепей выполнен с учетом Рекомендаций Руководства по установлению допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферу (ДВ-98) [4], Технического доклада МАГАТЭ № 472 [5] и Материалов комплексного экологического обследования северной части территории СИП НЯЦ РК [6].

Расчеты выполнены с использованием программы Excel MS.

Эффективная доза техногенных радионуклидов лиц из населения (критической группы) определена как сумма дозовых нагрузок  $E_R$  от имеющихся на территории радионуклидов R, в основном от глобальных выпадений ( $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ;

$$E = \sum_R E_R \quad (1.1)$$

В свою очередь, эффективная доза  $E_R$  от радионуклида R является суммой парциальных доз  $E_{Rj}$  по j-тым факторам радиационного воздействия, в том числе:

- 1) внешнее облучение гамма-излучением;
- 2) внешнее облучение бета-излучением;
- 3) внешнее облучение «грязью» рук;
- 4) внутреннее облучение от ингаляции радионуклидов;
- 5) внутреннее облучение от поступления радионуклидов в пищу;
- 6) внутреннее облучение от поступления радионуклидов с «грязью» рук.

$$E_R = \sum_j E_{Rj} \quad (1.2)$$

Определение парциальных (обеспечивающих неперевышение дозы 1 мЗв в год в условиях монофакторного воздействия одного радионуклида) ДРП территорий (Таблица 1) изложено в докладе «Определение допустимых радиационных параметров территорий».

Основным источником неопределенности в оценках радиационной опасности являются коэффициенты перехода радионуклидов в растения и пищевые продукты. Разброс экспериментальных значений является значительным (более 1 порядка).

Таблица 1 Парциальные допустимые удельные активности радионуклидов в почве для территорий, благополучных по радиоэкологической обстановке (менее 1 мЗв в год), кБк/кг

Радионуклид	$^3\text{H}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{152}\text{Eu}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
Радиационный фактор							
Внеш. бета- излучение		380	$4,8 \cdot 10^4$	$1,1 \cdot 10^4$	$3,2 \cdot 10^4$		
Пыль на коже		$9,6 \cdot 10^3$	$2,3 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$	<b>1,7</b>	<b>1,7</b>
Гамма- излучение		$5,5 \cdot 10^4$	<b>2,6</b>	<b>1,4</b>	<b>1,4</b>		48
Ингаляция	1,9 (кБк/м <sup>3</sup> )	$2,6 \cdot 10^3$	$2,7 \cdot 10^4$	$2,9 \cdot 10^3$	$2,3 \cdot 10^3$	<b>2,5</b>	<b>3</b>
Грязные руки		430	$9,3 \cdot 10^3$	$3,1 \cdot 10^3$	$1,9 \cdot 10^3$	54	61
Питьевая вода открытых Водоёмов, кБк/л	<b>77</b>	<b>3</b>	1000	$1,1 \cdot 10^5$	$6,8 \cdot 10^4$	700	1200
Молоко	<b>77</b>	<b>1,6</b>	29	$8,4 \cdot 10^5$	$5,2 \cdot 10^5$	3700	845
Мясо говядина	347	5,3	110	$2,8 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^4$	1130
Мясо баранина	347	45	150	$1,8 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^5$	$1,6 \cdot 10^5$	$7,2 \cdot 10^3$

Результаты расчетов показывают, что для каждого радионуклида имеются основные факторы радиационного воздействия, определяющие величину вклада этого радионуклида в дозу (выделены в Таблице 1 полужирным шрифтом). Для трития это употребление воды, для альфа-излучающих радионуклидов плутония и америция ингаляция и излучение пыли на коже, для радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{152,154}\text{Eu}$  мощность гамма-излучения, для радионуклидов  $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$  потребление молока либо воды открытых водоёмов. Другие факторы радиационного воздействия вносят меньший вклад, часто пренебрежимый в сравнении с погрешностью измерений.

Значительная часть территории Казахстана, в том числе и территории СИП, малопригодна для пахотного земледелия и используется как **лугопастбищные территории мясомолочного скотоводства** с преобладанием в питании продуктов собственного производства. В этом случае основной вклад во внутренние дозы населения обусловлен употреблением мяса и молока, вклад от употребления растительных продуктов является незначительным. ДРП радионуклида в почве территорий лугопастбищного земледелия, благополучных по радиоэкологической обстановке, с учетом всех факторов радиационного воздействия при условии наличия в почве одного радионуклида, приведены в Таблице 2. Для сравнения в Таблице 2 приведены действующие в Республике Казахстан нормативы загрязнения территорий в соответствии с Постановлением № 653 Правительства РК от 31.07.2007 г. [7], молока и мяса

согласно СанПиН РК «Гигиенические требования к безопасности и пищевой ценности пищевых продуктов» от 11.06.2003 г. № 4.01.071.03..

Таблица 2 - Допустимые параметры радионуклидов на территориях лугопастбищного земледелия при дополнительной эффективной дозе от радионуклида 1 мЗв/год.

Радионуклид	<sup>3</sup> H	<sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> Cs	<sup>152,154</sup> Eu	<sup>239,240</sup> Pu	<sup>241</sup> Am
ДРП						
Удельная активность почвы, Бк/кг	45000	850	2300	1400	980	1030
Удельная активность воды						
Плотность загрязнения, кБк/м <sup>2</sup>		170	230	140	100	100
Плотность загрязнения, Ки/км <sup>2</sup>		4,6	6,2	3,8	2,7	2,8
То же по Постановлению № 653 Правительства РК, Ки/км <sup>2</sup>		0,2	3			0,01
Мощность эквивалентной дозы, мкЗв/ч			0,24	0,29		0,008
Плотность потока бета-частиц, ч/мин*см <sup>2</sup>		2,8	0,67	0,68		
Плотность потока альфа частиц, част/мин*см <sup>2</sup>					0,065	0,07
Удельная активность в сене, Бк/кг		340	45	14	20	100
Плотность потока бета-частиц от сена, част/мин*см <sup>2</sup>		1,1	0,014	0,007		
Удельная активность молока, Бк/л	45000	16	17	0,001	0,003	0,016
То же, согласно СанПиН № 4.01.071.03		25	100			
Удельная активность говядины, Бк/кг		43	36	1,3	0,02	0,5
Удельная активность баранины, Бк/кг		5	26	0,2	0,003	0,1
То же, согласно СанПиН № 4.01.071.03		50	160			

Результаты расчетов свидетельствуют, что радиозоологические токсичности рассмотренных радионуклидов примерно равны, максимальное расхождение не превышает трехкратного значения. Общепринятое мнение о более высокой (на 2 порядка) радиозоологической опасности трансураниевых радионуклидов сильно преувеличено.

Рассчитанные значения допустимой активности существенно занижены в сравнении с нормативно установленными на рубеже XXI века компетентными органами экономически развитых государств (США [8], Великобритания [2,9]) обобщенными производными пределами содержания радионуклидов в величинах удельной активности (Таблица 3) вследствие принятия максимальных значений коэффициентов перехода радионуклидов в окружающей среде. Наименьшее занижение (коэффициент запаса около 2) по радионуклидам <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu и <sup>154</sup>Eu, занижение примерно в 3 раза по <sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y и примерно в 5 раз для трансураниевых радионуклидов.

Таблица 3 – Пределы содержания радионуклидов в почве по уровню 1 мЗв в год в нормативных документах некоторых государств, Бк/кг

Страна	Великобритания		США	РФ	РК	Расчет авторов отчета	
Год введения, документ	2003 [2]	1998 [9]	1997 [8]	2002 [10,11]	2007 [7]		
Вид использования территории	Сельское хозяйство	Строительство	Неограниченное использование территорий			Лугопастбищное земледелие	
Радионуклид	Предел удельной активности почвы, Бк/кг						
<sup>90</sup> Sr	1100	1100	400	420	220	74	850
<sup>137</sup> Cs	5500	4100	600	400	1800	1100	2300
<sup>239,240</sup> Pu	36900	8500	5000	70	7,4	3,7	980
<sup>241</sup> Am	33000	10000	5000	70	7,4	3,7	1030

*Примечание к Таблице 12: Удельные активности по документам РФ и РК приведены в предположении, что выпадающая активность депонирована в верхних 5 см почвы.*

В результате анализа нормативов и данных Таблицы 11 можно заключить: Установленные в государствах пределы удельной активности <sup>90</sup>Sr ниже, чем оценки NRPB [2] и имеют больший разброс. В США и Великобритании они установлены с коэффициентом запаса 2,5 относительно оценок NRPB, в РФ с коэффициентом запаса 4, в РК с коэффициентом запаса 10.

Наибольший разброс наблюдается в нормативах допустимого содержания плутония. В Великобритании норматив установлен с коэффициентом запаса 1,7, в США с коэффициентом запаса 120, в РФ с коэффициентом запаса 1000, в РК с коэффициентом запаса 2500 относительно оценок NRPB.

Полученные авторами величины допустимой активности радионуклидов меньше, чем в Отчете 38 NRPB. По радионуклиду <sup>90</sup>Sr они практически совпадают. Расхождение допустимой активности радионуклида <sup>137</sup>Cs (в 2 раза), скорее всего, обусловлено различием в принятых доле времени пребывания на открытом воздухе (30% вместо среднемировой 20%) и коэффициентов перехода в растения и продукты питания (в Отчете 38 NRPB приняты средние

значения по данным МАГАТЭ), радионуклидов плутония различием в принятой запыленности ( $1 \cdot 10^{-6}$  кг/м<sup>3</sup> вместо  $1 \cdot 10^{-7}$  кг/м<sup>3</sup>, принятой в Отчете 38 NRPB) и временем пребывания на открытом воздухе.

В США и Великобритании нормативы установлены именно в величинах удельной активности с допущением, что загрязнение однородно распространено на неограниченную глубину. В РФ и РК нормативы установлены в величинах выпадений (Бк/м<sup>2</sup>) и приведенные в Таблице 11 значения удельной активности соответствуют ситуации размещения радионуклидов в верхнем 5-7 см слое почвы. При учете распространения радионуклидов в глубину расхождение нормативов будет увеличиваться.

Для оценки радиационной опасности территорий, загрязненных несколькими радионуклидами, необходимо знание хотя бы одного измеряемого параметра  $\Pi_R$  каждого из 8 радионуклидов:  $E$  (мЗв/год) =  $\Sigma_R (\Pi_R / \Pi_{R1})$ .

Методически и экономически целесообразно определять влияние радионуклида по параметру, характеризующему основной фактор радиационного воздействия, определяющий создаваемую радионуклидом эффективную дозу, и наиболее доступному для измерения. Для радионуклида трития это измерение удельной активности атмосферной и почвенной влаги (воды открытых водоемов), для альфа-излучающих радионуклидов плутония и америция измерение удельной активности аэрозолей и почвы, для радионуклидов <sup>137</sup>Cs и <sup>152,154</sup>Eu измерение мощности гамма-излучения, для радионуклидов <sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y измерение удельной активности растений и, по возможности, молока.

Учитывая особенности токсичности и характер выпадений радионуклидов, можно снизить необходимое количество измеряемых параметров без ущерба для радиационной безопасности. Например, в условиях выпадений продуктов деления:

А) Радиотоксические и миграционные характеристики основных альфа-излучателей <sup>239</sup>Pu и <sup>240</sup>Pu равны и достаточны измерения суммы параметров этих радионуклидов.

Б) Радионуклид <sup>241</sup>Am является продуктом распада радионуклида <sup>241</sup>Pu и максимальная активность радионуклида <sup>241</sup>Am в продуктах ядерных взрывов не может превысить 25% от активности радионуклидов <sup>239,240</sup>Pu. Можно, снизив на 20 % предельную удельную активность (до 800 Бк/кг), исключить необходимость определения параметров радионуклида <sup>241</sup>Am.

В) Основным дозообразующим фактором радионуклидов <sup>137</sup>Cs, <sup>152</sup>Eu и <sup>154</sup>Eu является мощность дозы гамма-излучения, причем критические параметры для этих радионуклидов близки (0,24 и 0,29 мкЗв/ч соответств установив предел эквивалентной дозы 0,24 мкЗв/ч над фоном, можно исключить необходимость измерения параметров радионуклидов <sup>152</sup>Eu и <sup>154</sup>Eu.

Г) Предельные плотности потока бета-излучения для радионуклидов <sup>137</sup>Cs и <sup>152,154</sup>Eu равны и в 5 раз ниже, чем для <sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y, поэтому плотность потока бета-излучения определяется в основном радионуклидами <sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y и характеризует их удельную активность. В любом случае по величине дополнительной мощности дозы гамма-излучения можно определить вклад бета излучения радионуклидов <sup>137</sup>Cs+<sup>152,154</sup>Eu.

Д) Основным фактором радиационного воздействия радионуклида <sup>90</sup>Sr является поступление радионуклида по пищевым цепям через растения и методически обоснованно в качестве параметра <sup>90</sup>Sr определять его удельную активность в растительности и, по возможности, в молоке.

В итоге, для оценки радиационной опасности территорий необходимо знание 4-х измеряемых параметров: удельной активности <sup>3</sup>H и <sup>239,240</sup>Pu, мощности дозы гамма-излучения и одного из параметров радионуклидов <sup>90</sup>Sr+<sup>90</sup>Y.

На значительной части территорий РК отношение выпадений основных радионуклидов <sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs находится в интервале  $K = 0,35 - 0,7$ , в любом случае, менее 0,7. В связи с более высокой миграционной способностью <sup>90</sup>Sr (0,8 см/год) в сравнении с <sup>137</sup>Cs отношение удельной активности этих радионуклидов в почвах будет не более 0,4. На этих территориях можно оценить степень радиационной опасности от этих двух радионуклидов по результатам измерений выпадений <sup>137</sup>Cs, и общую радиационную опасность в первом приближении можно достаточно точно оценить по измерениям содержания 3-х радионуклидов: <sup>3</sup>H, <sup>137</sup>Cs и <sup>239,240</sup>Pu. В случае  $K = A^{90}\text{Sr}/A^{137}\text{Cs} = 0,4$  комбинированный предел удельной активности <sup>137</sup>Cs с учетом содержания <sup>90</sup>Sr будет равен 1100 Бк/кг (в том числе <sup>90</sup>Sr 440 Бк/кг) и допустимая плотность загрязнения радионуклидом <sup>137</sup>Cs равна 3 Ки/км<sup>2</sup> (в том числе <sup>90</sup>Sr 2,4 Ки/км<sup>2</sup>).

На следах выпадений продуктов деления урана удельная активность радионуклидов плутония менее 5 % от удельной активности радионуклида <sup>137</sup>Cs и радиационной опасностью плутония можно пренебречь. На таких территориях при отсутствии значимой активности трития в воде можно считать территории с дополнительной мощностью эквивалентной дозы менее 0,11 мкЗв/час радиационно-безопасными в отношении техногенного излучения. В таблице 4 приведены допустимые на таких территориях радиационные параметры по уровню годовой эффективной дозы 1 мЗв.

Таблица 10 Допустимые радиационные параметры на территориях ЛПЗ с выпадениями продуктов деления урана, благополучных по радиационной опасности техногенных радионуклидов.

Радионуклид	<sup>90</sup> Sr	<sup>137</sup> Cs
Параметр		
Удельная активность в почве, Бк/кг	440	1100
Плотность выпадений, кБк/м <sup>2</sup>	88	110
Плотность выпадений, Ки/км <sup>2</sup>	2,4	3,0
Мощность эквивалентной дозы, мкЗв/час	0,11	
Плотность потока бета-частиц, част/мин*см <sup>2</sup>	1,4	
Удельная активность сухого сена	176	22

### *Radiation Ecology*

Плотность потока бета-частиц от сена, част/мин*см <sup>2</sup>	0,56	
Удельная активность молока, Бк/л	8	8
Удельная активность говядины, Бк/кг	21	17
Удельная активность баранины, Бк/кг	2,5	13

#### **ИСПОЛЬЗОВАННЫЕ ДОКУМЕНТЫ И ЛИТЕРАТУРА**

1. Методическая инструкция «Определение допустимых радиационных параметров территорий» МИ-03-13.07-02-2010, ИЯФ НЯЦ РК, исх № 14-5/1473 от 26.05.2010 г.
2. W B Oatway and S F Mobbs "Methodology for Estimating The Doses to Members of the Public from the Future Use of Land Previously Contaminated with Radioactivity", Report NRPB W36 National Radiological Protection Board Great Britain, 2003
3. Руководство по радиометрической съемке и радиационному обследованию территорий (MARSSIM), разработано Комитетом из представителей государственных Агентств США (EPA, NRS, DOE, DOD) под председательством Colleen F. Petullo. декабрь 1997.
4. Руководство по установлению допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферу (ДВ-98), Госкомэкологии, Минатом РФ. 21.01.1999 г.
5. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports series, No 472, International Atomic Energy Agency, January, 2010.
6. Материалы комплексного экологического обследования северной части территории СИП РГП НЯЦ РК, Курчатов 2010 г.
7. Постановление Кабинета Министров РК «Об утверждении критериев оценки экологической обстановки территорий» № 653 от 31 июля 2007 г.
8. *Working Draft Regulatory Guide on Release Criteria for Decommissioning: NRC Staff's Draft for Comment.* NUREG-1500, U. S. Nuclear Regulatory Commission, Office of Nuclear Regulatory Research, Washington, D.C.
9. Generalised derived limits for radioisotopes of strontium, ruthenium, iodine, caesium, plutonium, americium and curium. Doc NRPB, 9. 1998, Doc NRPB 11. 2000.
10. Закон РФ от 18 июня 1992 г. N 3061-I "О социальной защите граждан, подвергшихся воздействию радиации вследствие катастрофы на Чернобыльской АЭС".
11. Закон РФ от 23 декабря 2003 г. "О внесении изменений и дополнений в Закон РСФСР "О социальной защите граждан, подвергшихся воздействию радиации вследствие катастрофы на Чернобыльской АЭС"

#### **ИЗМЕНЕНИЕ СОСТАВА И БИОМАССЫ ГАЛОФИТНЫХ ФИТОЦЕНОЗОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА В УСЛОВИЯХ ДЛИТЕЛЬНОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ МАЛЫХ ДОЗ ХРОНИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ.**

Плисак Р.П., Плисак С.В.

*Институт ботаники и фитоинтродукции МОН Республика Казахстан, г. Алматы*

Исследованиями многих авторов [1,2,3,4] выявлено, что при малых дозах хронического излучения действуют непрямые механизмы влияния на экосистемы радиации низких интенсивностей. С уменьшением интенсивности излучения вероятность повреждения клетки увеличивается. Длительное воздействие радиации низкой интенсивности представляет большую опасность для клеточных мембран, чем однократное облучение радиацией большей интенсивности. Наибольшая опасность загрязнения биосферы малыми дозами хронического излучения состоит в том, что их непосредственное влияние на организм гораздо безобиднее, чем отдаленные последствия интоксикации. Масштабы их вреда непредсказуемы. В пищевых цепочках концентрация радионуклидов возрастает в геометрической прогрессии. При длительном воздействии малых доз радиации выявлена повышенная вариабельность, лабильность цитоморфологических признаков и физиологических свойств растений.

Первичные радиационные эффекты в экосистемах в зависимости от дозы облучения могут варьировать от незначительных изменений до полной гибели наименее радиорезистентных видов [5]. Летальный исход видов представляет собой крайний случай воздействия ионизирующих излучений на организм [6,7]. При меньших дозах облучения растения не погибают. Происходит угнетение жизнедеятельности. В этом случае реакцию сообщества на облучение нельзя рассматривать в отрыве от воздействия на организмы других факторов внешней среды [6]. Ионизирующие излучения могут играть роль лишь пускового механизма, а вся последующая цепь нарушений связана с вторичными процессами [8]. Спектр вторичных радиационных изменений в экосистемах достаточно широк. Типичной вторичной лучевой реакцией в облучаемых фитоценозах является более интенсивное развитие радиорезистентных видов [9,10]. Вторичные эффекты, возникающие под действием облучения (сокращение продолжительности жизни, нарушение жизнеспособности потомства и т.д.) при наступлении особо неблагоприятных экологических условий понижают вероятность выживания облученных видов [6,11,12]. Угнетающее влияние излучений на организм в сочетании с действием других факторов внешней среды приводит к изменению видового

состава и структуры сообществ, выпадению некоторых радиочувствительных видов, к изменению степени проективного покрытия, ярусности, направления и скорости сукцессий и т.д.[13,14].

Рассматриваемая территория расположена в пределах сухих дерновиннозлаковых степей на каштановых почвах и опустыненных полынно-ковыльных степей на светлокаштановых почвах.

В подзонеопустыненных полынно-ковыльных степей господствуют фитоценозы, сложенные дерновинным злаком *Stipasareptanae* полукустарничком (*Artemisiafrigida*) с участием кустарника *Caraganapumila*.

Они формируются в комплексе с сообществами *Campharosmamonspeliaca*, *Atriplexcana*, *Artemisiapauciflorae* *Anabasisalsana* солонцах. По межсочным понижениям и окраинам озёр формируются сообщества солонцово-солончакового типа: *Psathyrostachysjuncea*, *Halimodendronhalodendron*, *Achnatherumsplendens*, *Nitrariasibirica*, *Halocnemumstrobilaceum*, *Kalidiumfoliatum* др.

Галофитные сообщества на территории Семипалатинского полигона занимают незначительную площадь. Они распространены в депрессиях на аллювиально-пролювиальных и делювиально-пролювиальных равнинах и межсочных понижениях. Почвы – обыкновенные солончаки. Они формируются в условиях дополнительного увлажнения за счёт дождевых и снеготалых вод (склоновый сток). Дополнительное увлажнение в отрицательных элементах рельефа способствует некоторой активации в процессе миграции радионуклидов. Но значительного перераспределения содержания радионуклидов в почвенном профиле не происходит. Максимальное накопление радионуклидов отмечается в поверхностном слое почв 0-5 см. Основные физико-химические показатели почв также не влияют на интенсивность миграции радионуклидов. Содержание гумуса в солончаках достигает 2,0-2,4%, рНраствора – 7,9-8,6. В механическом составе этих почв преобладают суглинистые и тяжелосуглинистые разности.

Объект исследований – ксерогалофитносарсазаново-лебедовое (*Halimioneverrucifera* + *Halocnemumstrobilaceum*) сообщество, формирующееся при мощности экспозиционной дозы  $\square$  - излучения 40-50 мкр/час (на контроле – 10-12 мкр/час). Доминирующие виды – низкие ксерогалофитные полукустарнички. В экобиоморфо-логическом и флористическом составе растений, слагающих сообщества загрязнённого и контрольного участков заметных различий не выявлено. Видовое разнообразие на загрязнённом участке выше (13-15 видов), чем на контроле (6-8 видов). Это обусловлено как радиационным загрязнением, так и более разнообразными динамическими экологическими условиями на загрязнённом участке: почвы формируются под влиянием капиллярной каймы грунтовых вод. От весны до осени уровень грунтовых вод понижается и вызывает изменения в водно-солевом режиме почв. Растения дифференцируются по ритмам развития, экологическим типам и жизненным формам соответственно водно-солевому режиму почв.

В фенологическом спектре растений на загрязнённом и контрольном участках заметных различий не отмечено. Выявлен сдвиг фенофазы плодоношения у доминирующих видов (*Halimioneverruciferae* *Halocnemumstrobilaceum*): на контрольном участке она наступает раньше, чем на загрязнённом.

В развитии растений на загрязнённом и контрольном участках отмечены некоторые различия. На загрязнённом участке жизнеспособность *Halocnemumstrobilaceum* была удовлетворительной. На контроле большая часть особей этого растения развивалась отлично, некоторые особи были в хорошем состоянии. Большая часть особей *Achnatherumsplendens* на загрязнённом участке развивалась хорошо. На контрольном участке это растение было в угнетённом состоянии. Жизнеспособность *Limoniumsuffruticosum* была хорошей на загрязнённом участке и удовлетворительной – на контроле.

На формирование горизонтальной и вертикальной структуры исследуемых сообществ радиационное загрязнение не оказывает заметного влияния.

Степень общего проективного покрытия в данных сообществах на загрязнённом участке достигала 55-80% (на контроле 50-80%). Степень покрытия почвы растениями на загрязнённом участке колебалась от 45 до 70% (на контроле – от 40 до 75%). Напочвенный покров на загрязнённом участке составлял 5-15% (на контроле – 2-15%).

Количество особей доминирующих растений на 1 м<sup>2</sup> на загрязнённом участке у *Halimioneverrucifera* достигало 5-13 (на контроле – 1-9), у *Halocnemumstrobilaceum* – 2-5 (на контроле – 1-7).

Высота одной особи доминирующего растения на загрязнённом участке у *Halimioneverrucifera* достигала 5-17 см (на контроле 5-20 см), у *Halocnemumstrobilaceum* – 3-10 см (на контроле – 4-15 см).

Средний вес одной особи *Halimioneverrucifera* на загрязнённом участке составлял 10,1-21,6г (на контроле 14,9-24,6г), у *Halocnemumstrobilaceum* – 19,0-21,0г (на контроле – 32,0-36,0г).

Надземная биомасса в данных сообществах на загрязнённом участке достигала 398,1-479,3 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 816-871,5 г/м<sup>2</sup>).

Глубина проникновения корней растений в исследуемых сообществах на загрязнённом участке составляла 90-95 см (на контроле 60-68 см). Наиболее насыщен корнями растений был слой почв 0-25(30) см (на контроле 0-20(30) см).

Вес подземных органов *Halimioneverrucifera* на загрязнённом участке в слое почв 0-30 см достигал 236,8 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 400-420 г/м<sup>2</sup>), у *Halocnemumstrobilaceum* соответственно 105,6-112,0 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 336,0-345,2 г/м<sup>2</sup>). Средний вес корня одной особи *Halimioneverrucifera* на загрязнённом участке составлял 32,6-36,2г (на контроле – 30,1-31,6г), у *Halocnemumstrobilaceum* соответственно 15,1-16,1г (на контроле – 30,0-32,4г).

Тератологических изменений у растений в исследуемом сообществе на загрязнённом участке не выявлено.

Максимальная аккумуляция основных загрязнителей Cs<sup>137</sup> и интегральных  $\alpha$  - и  $\beta$  - излучателей характерна для верхних слоёв почвы. В слое 0-4 см Cs<sup>137</sup> накапливается 2256 Бк/кг, в слое 4-10 см – 572 Бк/кг, в слое 20-30 см – 0,9 Бк/кг, (на контроле в слое 0-2 см – 24,9 Бк/кг, в слое 2-25 см – 5,3 Бк/кг). Содержание интегральной  $\beta$  – активности в слое 0-4 см составляет 7090 Бк/кг, в слое 4-10 см – 3000 Бк/кг, в слое 20-30 см – 900 Бк/кг (на контроле в слое 0-2 см – 700 Бк/кг, в слое 2-25 см - Бк/кг). Содержание интегральной  $\alpha$  – активности в слое 0-4 см достигает 2370 Бк/кг, в

слое 4-10 см – 1490 Бк/кг, в слое 20-30 см – 1790 Бк/кг (на контроле в слое 0-2 см – 620 Бк/кг, в слое 2-25 см – 1010 Бк/кг).

В золе корней доминирующего растения *Halimioneverrucifera* содержание  $Cs^{137}$  колеблется от 143 до 753 Бк/кг (на контроле – от 13 до 78 Бк/кг). В золе надземной части этого растения содержание  $Cs^{137}$  колеблется от 83 до 556 Бк/кг (на контроле – от 5 до 15 Бк/кг). Содержание интегральной  $\beta$  – активности в золе корней *Halimioneverrucifera* колеблется от 4300 до 11100 Бк/кг (на контроле – от 1520 до 1530 Бк/кг), в золе надземной части от 2550 до 5100 Бк/кг (на контроле – 1950 до 2370 Бк/кг). Содержание интегральной  $\alpha$  – активности в золе корней *Halimioneverrucifera* колеблется от 1200 до 3100 Бк/кг (на контроле – от  $\square$ 810 до 900 Бк/кг), в золе надземной части этого растения – от  $\square$ 900 до 910 Бк/кг (на контроле от  $\square$ 350 до 800 Бк/кг).

В золе корней доминирующего растения *Halocnemumstrobilaceum* содержание  $Cs^{137}$  колеблется от 135 до 239 Бк/кг (на контроле – от 92 до 230 Бк/кг). В золе надземной части этого растения содержание  $Cs^{137}$  составляет 112-113 Бк/кг (на контроле – 5-34 Бк/кг). Содержание интегральной  $\beta$  – активности в золе корней *Halocnemumstrobilaceum* колеблется от 5430 до 25300 Бк/кг (на контроле – от 3790 до 6400 Бк/кг), в золе надземной части этого растения – от 2380 до 3300 Бк/кг (на контроле – 1330-1360 Бк/кг). Содержание интегральной  $\alpha$  – активности в золе корней *Halocnemumstrobilaceum* колеблется от 3370 Бк/кг до 3900 Бк/кг (на контроле – от 2900 до 3040 Бк/кг), в золе надземной части достигает  $\square$ 1100 Бк/кг (на контроле -  $\square$ 800 Бк/кг).

Угнетающее влияние малых доз длительного хронического излучения в сочетании с действием других экологических факторов (динамичным водно-солевым режимом почв в течение вегетационного периода, высокой температурой воздуха, незначительной сорбцией радионуклидов корнями растений) вызвало следующие изменения в формировании ксерогалофитных фитоценозов:

- 1) видовое разнообразие на загрязнённом участке увеличилось до 13-15 видов (на контроле – 6-8 видов). Это обусловлено не только влиянием радиационного загрязнения, но и более разнообразными и динамичными экологическими условиями;
- 2) произошёл фенологический сдвиг в наступлении фазы плодоношения у доминирующих видов *Halocnemumstrobilaceum* и *Halimioneverrucifera*;
- 3) уменьшились средний вес и высота одной особи доминирующих видов *Halocnemumstrobilaceum* и *Halimioneverrucifera*;
- 4) почти в 2 раза уменьшилась величина надземной биомассы фитоценозов;
- 5) произошло увеличение мортмассы и снижение скорости разложения органического вещества;
- 6) глубина проникновения корней доминирующих видов увеличилась на 27-30 см;
- 7) величина подземной биомассы фитоценозов уменьшилась в 1,6 – 2 раза.

#### Литература

1. McCormic I. F. McJunkin R. E. Interaction of gamma radiation and other environmental stresses upon pine // Health Phys. v. II, №2, 1985, pp. 10-14.
2. Шевченко В. А. // Генетические последствия радиационного загрязнения популяции растений. Радиоэкология, 36.4, 1996, с. 531-545.
3. Пинчук Л. В. Биологическое воздействие малых доз ионизирующей радиации низкой интенсивности. Радиобиологический конгресс. Тезисы. Киев, 1993, 84 с.
4. Подольский В. И. Адаптационные процессы в условиях влияния радиации // Экология, №2, 1996 с., 111-116.
5. Романов С. Л. Радиационная стабильность живой природы // I Всесоюзная конференция «Радиобиологические аспекты последствий аварии на Чернобыльской АЭС». Тезисы. 1990, с. 55.
6. Гродзинский Д. М. и др. Формирование радиобиологической реакции у растений. Киев, 1984, 216 с.
7. Маврицев В. В. Направление сукцессий демутиационных процессов в зоне Чернобыльской АЭС // Радиобиологический конгресс. Тезисы. Киев, 1993, с. 27.
8. Тихомиров Ф. А. Действие ионизирующих излучений на экологические системы. М. 1972, 176 с.
9. Дубинин Н. П. Эволюция популяций и радиация. М., 1966, 743 с.
10. Карагодин В. И. Проблемы пострадиационной реабилитации. М., 1966, 391 с.
11. Израэль Я. А. и др. Экологические последствия умеренного загрязнения природы в районе аварии Чернобыльской АЭС // Атомная энергия. 64,1, 1988, с. 28-40.
12. Францевич Л. И. и др. Вторичные изменения в повреждённых биоценозах. Чернобыльская катастрофа. Киев. 1995, с. 315-320.
13. Тимофеев-Ресовский Н. В. Краткая характеристика теории эволюции. М. Наука, 1969, 407 с.
14. Demchuk V. и др. Migration and transformation radionuclides in soil water system in near zone NPP // Proceedings of the International Symposium on Radioecology, Inaima, Oct., 1992, p. 14.



Турченко Д.В., Лукашенко С.Н., Айдарханов А.О., Ляхова О.Н.  
Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК

В настоящее время проведено множество работ посвященных изучению миграции техногенных радионуклидов в окружающую среду, как на территории опытно-экспериментальной площадки «Дегелен», так и за ее пределами. Среди наиболее распространенных техногенных радионуклидов, таких как  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^3\text{H}$  (тритий), присутствующих в данной экосистеме, наибольшими миграционными способностями обладает тритий. Проведенный сравнительный анализ компонентов экосистемы, на содержание трития, показал, что основное загрязнение экосистемы происходит из водоносных ручьев, расположенных на территории массива «Дегелен». Как отмечалось ранее, и в осадках и снежном покрове тритий периодически обнаруживался, при этом механизмы поступления и характер распределения трития ранее не изучались.

Целью работы являлось, выявление механизмов загрязнения тритием снежного покрова и оценка их влияния на пространственное распределение трития. Для этого были проведены следующие работы:

- исследование пространственного распределения трития по площади;
- исследование распределения трития по глубине снежного покрова;
- исследование динамики содержания трития в снежном покрове;
- оценка фоновых концентраций трития.

На рисунке 1 представлена схема расположения исследовательских участков в руслах ручьев площадки «Дегелен». Исследование снежного покрова проводилось в зимне-весенний период времени года, с учетом доступности автодорог в зимний период. Выбор исследуемых участков основывался на результатах обследования компонентов экосистемы, таких как, атмосферный воздух, растения, водяные пары атмосферного и почвенного воздуха. Объектами исследования были выбраны ручьи Карабулак, Узунбулак и Актыбай водотоки которых выходят за границы площадки «Дегелен».

Для оценки фоновых концентраций трития было выбрано 4 участка в г. Курчатове и 4 по периметру площадки «Дегелен» (Рисунок 1), на которых проводился точечный послойный отбор проб снега на глубину 20÷30 см.

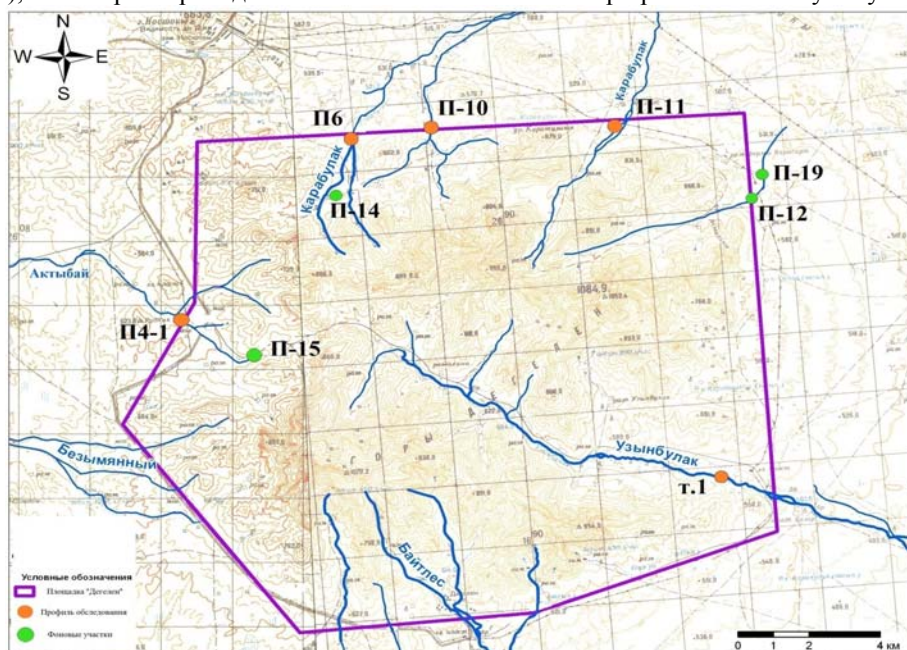
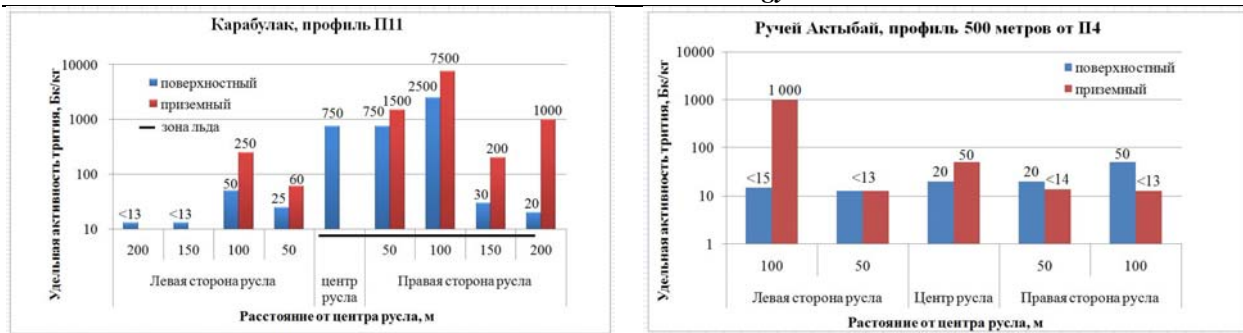


Рисунок 1. Объекты исследования на площадке «Дегелен»

На ручье Карабулак заложено 3 исследовательских профиля. На ручьях Актыбай и Узунбулак заложено по одному исследовательскому профилю. Каждый исследовательский профиль располагался по обе стороны русла с центром в центре русла ручья. Расстояние между точками обследования составляло 50 м, отбор проб снежного покрова проводился послойно на глубину от 10 до 30 см с шагом в 10 см. Каждый полученный образец размораживался до жидкого состояния, регистрировался и отправлялся в лабораторию для исследования содержания трития. Удельная активность трития определялась с использованием жидкосцинтилляционного спектрометра TriCarb.

В результате получен характер пространственного распределения трития в снежном покрове на ручьях Карабулак, Узунбулак и Актыбай (Рисунок 2).



а – Ручей Карбулак

б – Ручей Актыбай

Рисунок 15. Характер пространственного распределения трития в снежном покрове на ручьях

Очевидно, что в снежном покрове содержание трития в нижнем слое больше, чем верхнем слое. При этом максимальные концентрации трития сопряжены с зонами ледяного покрова в приземном слое снега, скорее всего, на водоносных ручьях основным механизмом перехода трития в снег является эманация с подстилающей поверхности.

Полученные результаты показали, что на водоносных ручьях Карбулак, Узынбулак и Актыбай снежный покров содержит значительные концентрации трития, содержание трития между слоями неоднородно, причем в приземном слое концентрация трития больше, чем в поверхностном слое. Данный факт указывает на то, что основным источником поступления трития в снежные покров является водоток ручья, при этом механизм поступления трития в снежный покров зависит от подстилающей поверхности, а именно перераспределение трития в системе лед-снег или почва-снег.

На Рисунке 3 представлено пространственное распределение трития относительно всех исследовательских ручьев. Для каждого ручья, концентрация трития нормирована на максимальное значение. Наиболее значимые концентрации трития, достигающие 10-40 кБк/кг, располагаются в среднем на расстоянии не более 200 м от центра русла, и ограничиваются руслом водотока ручья. По мере отдаления от центра русла в перпендикулярном направлении, концентрация трития в снежном покрове падает до значений фоновых уровней.

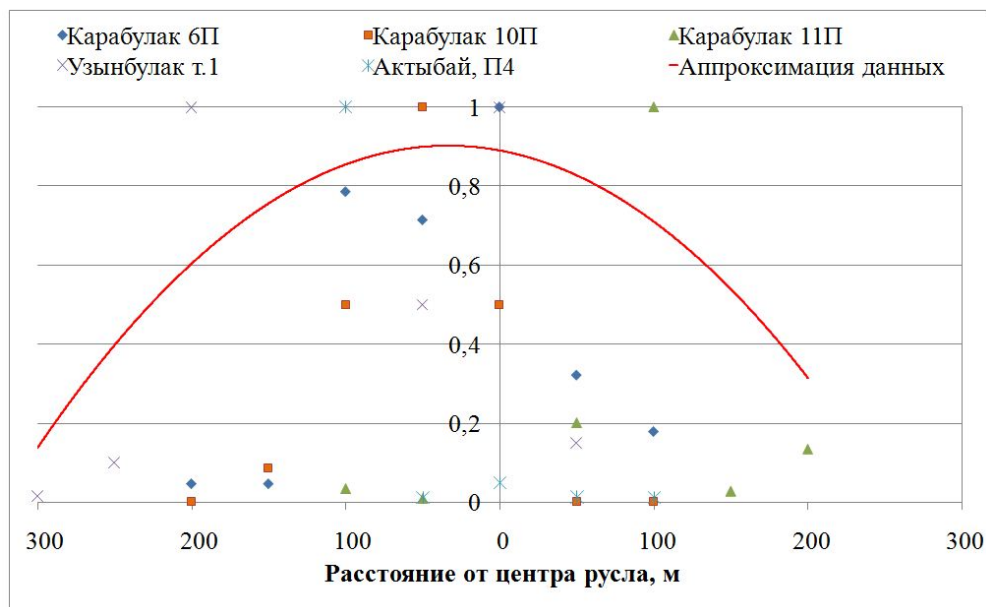


Рисунок 3. Пространственное распределение трития относительно русла всех ручьев

Содержание трития во всех слоях снежного покрова меняется с течением времени. Выяснилось, что в момент выпадения снега концентрация трития в поверхностном слое снежного покрова незначительна, а в период уплотнения снега содержание трития возрастает. Необходимо отметить, что максимальное содержание трития в приземном слое снежного покрова не превышает величины 70% от содержания трития в русловой воде ручьев.

Характер распределения трития в слоях снежного покрова, в фоновых точках площадки «Дегелен» (Рисунок 4), принципиально отличается от характера распределения трития в русле водотоков. Разница заключается в том, что концентрация трития во всех слоях снежного покрова приблизительно одинакова. Такой характер распределения содержания трития можно объяснить тем, что в момент снегоотложения, тритированные водяные пары, содержащиеся в атмосферном воздухе, конденсируются на частицах снега и равномерно распределяются по всей глубине снежного покрова. Можно предположить, что тритий, содержащийся в ручьях, вносит негативное влияние на атмосферную среду площадки «Дегелен», тем самым образуя бассейн микро-регионального характера, в снежном покрове которого постоянно содержится тритий, не превышающий 60 Бк/кг.

Слой, см	Удельная активность трития, Бк/кг							
	Окраины г. Курчатова				Периметр массива «Дегелен»			
	Север	Восток	Юг	Запад	П12	П14	П15	П19
0-10	<13	<13	<13	<14	55±7	35±7	<14	35±7
10-20	<15	–	<13	–	50±7	<14	20±7	–
20-30	–	–	–	–	45±7	–	–	25±7
– слой отсутствовал.								

Рисунок 4. Содержание трития на фоновых участках

Тритий в снежном покрове на окраинах г. Курчатова не обнаружен, при этом предел обнаружения составил 14 Бк/кг. Таким образом, содержащийся в воздушной среде массива «Дегелен» тритий не достигает г. Курчатова, что может быть связано с разбавлением трития в воздушной среде.

Определены основные механизмы поступления трития в снежный покров:

- эманация трития с подстилающей поверхности почвенного или ледяного покрова, т.е. происходит перераспределение трития из приземного в поверхностный слой снежного покрова;
- конденсация тритированных водяных паров на частицах снега в момент выпадения осадков снега, при этом содержание трития в слоях снежного покрова не достигает 60 Бк/кг.

Изучен характер пространственного распределения трития в снежном покрове. Наиболее значимые концентрации трития в снеге находятся, на расстоянии не более 200 м от центра русла, и ограничиваются руслом водотока.

## ИНЖЕНЕРНО-ГЕНОМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЯДЕРНЫХ И РАДИАЦИОННЫХ ОБЪЕКТОВ НА ПЛАНЕТЕ ЗЕМЛЯ И ЕЕ СУБЧАСТЯХ В СВЯЗИ С ОЦЕНКОЙ РИСКОВ ЭКОЛОГИЧЕСКИХ АВАРИЙ (АСПЕКТЫ КАТАСТРОФОВЕДЕНИЯ)

Усупаев Ш.Э., Атыкенова Э.Э.

*Центрально Азиатский институт прикладных исследований земли, г. Бишкек, Кыргызстан, [sh.usupaev@caiaig.kg](mailto:sh.usupaev@caiaig.kg).  
Института горного дела и горных технологий, г. Бишкек, Кыргызстан, E-mail [elita\\_kg@mail.ru](mailto:elita_kg@mail.ru)*

За последние 100 лет человечество, увеличив свою численность в пять раз, в десятки раз превысило нагрузку на биосферу планеты, одновременно нарастило энергетический потенциал в тысячу раз. При этом резко в связи с глобальным изменением климата, воздействием антропогенного и техногенного пресса на окружающую среду, участились не только природные опасные процессы и явления, возросли аварии на атомных объектах мирного и военного назначения. Примером крупнейших радиационных аварий на планете являются взрывы на Чернобыльской АЭС (СССР) и АЭС Фукусима (Япония).

Кыргызская Республика, в отношении радиационной и ядерной безопасности является участником Договора нераспространения ядерного оружия, открытого для подписания в Лондоне, Москве и Вашингтоне 1 июля 1968 года и вступившего в силу 5 марта 1970 года. К договору о нераспространении ядерного оружия (ДНЯО) Кыргызстан присоединился 5 июля 1994 года, а 18 марта 1998 года подписано «Соглашение о гарантиях». С 2003 года Кыргызская Республика вступила 134 государством членом в Международное агентство по атомной энергетике (МАГАТЭ).

Законодательно – правовая база в сфере обращения с радиоактивными веществами обеспечивается функционированием ниже следующих законов Кыргызской Республики: «О защите населения и территорий от чрезвычайных ситуаций природного и техногенного характера» №45 от 24 февраля 2000 года. «О радиационной безопасности населения Кыргызской Республики» № 58 от 17 июня 1999 года. «Об охране окружающей среды» 3 53 от 16 июня 1999 года «О хвостохранилищах и горных отвалах» № 57 от 26 июня 2001 года

Использование современных данных о изученности исследуемых объектов учета, а также разработанная новая ИГН методология и одноименные модели позволяют научно обосновано утверждать представить следующие доказательства (Рис 1-21) {1-15}:

**О концепции Инженерной геонимии и Катастрофологии как методологической основы Общей Теории Земли (ОТЗ).**

Предвидеть и предотвратить приближающийся энергетический и экологический кризисы, связанные с проблемами "предела роста населения Мира", а также роста многоступенчатых катастроф природного и техногенного характера невозможно без создания Общей теории Земли (ОТЗ), и к одним из первых ее шагов предлагается отнести разработанную инженерно-геономическую (ИГН) методологию и модели.



Фактически, с позиций «Катастрофоведения» природная среда является уязвимой, содержит потенциалы риска и сопряжена с опасными изменениями протекающими в взаимодействующих друг с другом множества геосфер Земли.

Основой ИГН методологии, является разработанная объемная динамическая модель планеты Земля, которая в отличие от известных состоит их нижеследующих особенностей имеющих обоснование с позиций нового научного направления «Катастрофоведения»:

1. Планеты Солнечной системы, в т. ч. Земля в комической истории их образования, прежде чем оказаться в современном их состоянии, ранее испытывали, и в будущем предрасположены к столкновениям друг с другом, и иными небесными телами, начиная от подобных планет, их спутников, до астероидов, комет и метеоритов. Вышеприведенная позиция ударного столкновения небесных тел друг с другом, как научное направление палеокоптогенеза, была упущена и не разработана в течение прошедших 20 столетий, и не имеет должного развития в 21 веке.

2. Земля, в своей геологической истории претерпела по данным гипотезы Ачкасова П.В. (2006) пять столкновений с подобными по размеру другими планетами, оказавшимися ранее не однократно в опасной для их ударного объединения расстоянии, т.е. критической близости к основной (первоначальной) Земле.

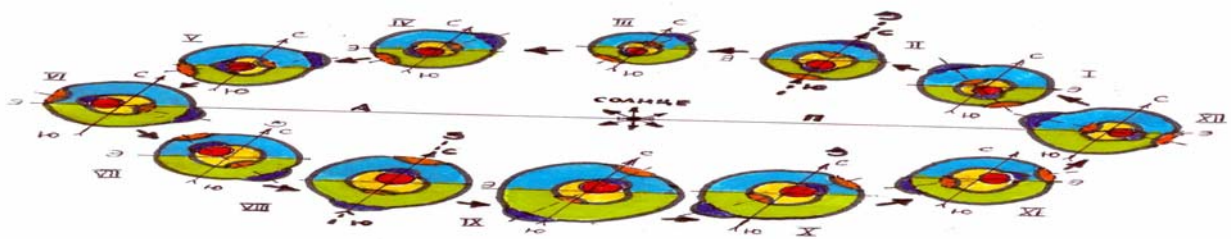
3. В связи с вышеприведенными обстоятельствами, внутри внешнего (жидкого) ядра Земли, вращаются шесть твердых ядер различной величины, при этом наибольший радиус имеет твердое ядро первоначальной пра-Земли. Вышеуказанные шесть твердых ядер после их ударного столкновения и проникновения в центр нашей планеты, оставили как на поверхности, так и в объемной фигуре Земли в ее геологической записи, ассиметричные палеодеформации в виде геоидных «шрамов» следов палео-катастрофических столкновений.

Таким образом, современная геохронологическая шкала, раскрывающая историю образования нашей планеты, в связи с вышеуказанным требуется пересмотр на ней времени и рубежей для фиксации времени пяти плането-блемных и около сотен актов астероидо-блемных ударных столкновений небесных тел с Землей. В моделях геонотов, и объемной фигуре-геоиде планеты, а также мегаструктурах центрального типа (МЦТ), и космо-геологических картах коптогенеза, отражены закономерности ИГН формирования и становления Земли.

В качестве основ ИГН, составлены сравнительно-аналитические и синтезирующие разно-тематические ИГН модели по-широтного и по-долготного распределения геонотов: территориальности, акваториальности, орогенности (территориальной и акваториальной), вулканичности, сейсмичности, распределенности количества землетрясений (акваториальных, территориальных), позволяющие с новых информационных позиций повысить потенциал прогнозируемости геокатастроф, в т.ч. землетрясений, а также сопряженных с ними геонотов распределения радиактивных и ядерных объектов учета.

В ИГН моделях предупреждения катастроф, на поверхности Земли в пределах земной коры и ее литосферы, выделяются более высокие по рангу в отличие от геологических формаций латеральные и имеющие глубинные «корни» геоноты представленные копто-формациями объединенными в морфо-тектуры и мегаструктуры Центрального типа.

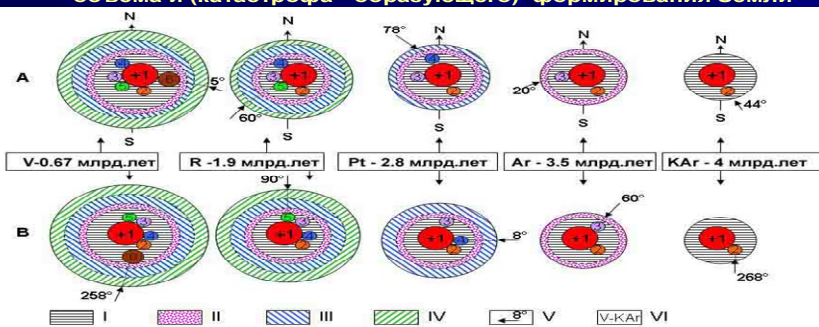
ИГН модель Земли, также получила обоснование в экспериментальных измерениях естественного электромагнитного поля нашей планеты, при регистрации исходящих из недр с различной частотой импульсов (ЕИМПЗ), осуществленных российскими учеными на сегменте планеты в Северном полушарии протяженностью 500 км по ширине и около 4000 км по длине (на территории Российской Федерации). Проведенные на вышеуказанном гигантском по размерам полигоне инструментальные мониторинговые



**Рис. 3. Инженерно-геономическая (ИГН) объемная динамическая модель природы планетарного формирования стихийных бедствий и катастроф на примере Земли.**  
 На ИГН модели: А-афелий, Земля наиболее удалена от Солнца на расстоянии около 152,1 млн.км., скорость орбитального полета наименьшая равна 29,7 км/сек., планета испытывает реакции сию расщепления и объема, при этом сила тяготения (тяжести) погружается в глубину в недра, а твердые ядра поднимается внутри жидкого ядра в направлении северного полушария; II – афигелий, Земля максимально приближена к Солнцу на расстоянии 147 млн. км., при этом скорость орбитального вращения планеты наибольшая и составляет 30,27 км/сек, а в объеме Земли подвигается усиление сжатия, что заставляет силы тяжести (тяготения) максимально переместиться к поверхности Земли, одновременно твердые ядра внутри жидкого ядра по своему орбитальному пульсирующему движению опускается в южное полушарие; III – афигелий – объединенные твердые шесть ядер Земли возникшие за всю геологическую историю в результате пяти столкновений с равновеликими планетарно-объектами; жидкий – жидкое ядро планеты внутри которой по собственной орбите под углом около 45 градуса вращаются твердые ядра, голубой – северное и зеленый – южное полушария Земли, синий – сегменты планеты испытывающие поперечные напряжения и геосформации вытягивания и растяжения вещества геосфер, оранжевый – сегменты планеты последовательно и импульсно подвергающиеся напряжениям и геосформациям втягивания, со сжатием вещества геосфер; Стрелки показывают направление орбитального и осевого вращения Земли и внутренней геосферы. I – XII – месяцы года; Э – экватор, С – Северный, Ю – южный полюса Земли.

Рис. 1. ИГН модель вращения Земли вокруг Солнца, и одновременно под углом 45 градуса собственного орбитального пульсирующего вращения внутри жидкого ядра планеты и шести взаимосвязанных между собой твердых центральных ядер Земли.

ИГН модели ударно-пульсационного увеличения объема и (катастрофо-образующего) формирования Земли



А - широтные разрезы; В - долготные разрезы ПалеоЗемли. Геосферы: I - полиядерная, II - интерполисферационная жидкая ядерная, III - мантийная, IV - палеолитосферная, V - координаты ударного прошивающего геосферы столкновения ПалеоЗемли с древними планетоблемами, VI - геологические рубежи ударно-пульсационного преобразования планеты, 1-5 полиядра Земли (1. Палеоземли, 2,2-5 древних планетоблем)

Рис.2. ИГН модель геологической истории формирования геосфер и ядер планеты Земля катастрофо-образующими процессами и явлениями.

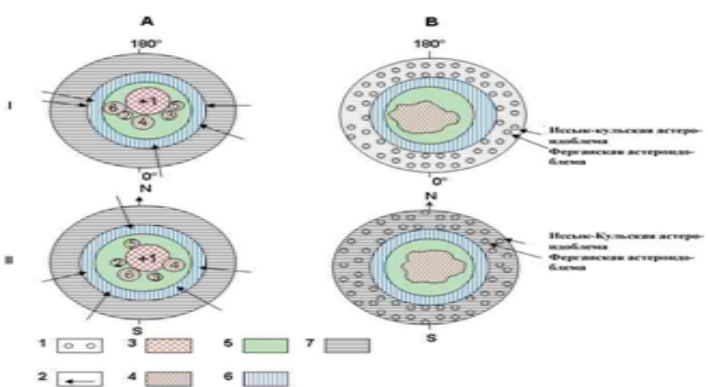


Рис.2 Инженерно-геономическая модель ударного преобразования и пульсационного расширения Земли. Разрезы планеты Земля: I - долготный, II - широтный; 1 - астероидоблема (в т.ч. ИК-Иссык-Кульская, Ф-Ферганская); 2 - координаты столкновения планетоблем и астероблем с Землей; 3 - Центральное, 4 - Планетоблема, 5 - Внутреннее, 6 - Внешние, 7 - мантия; черной толстой линией выделена - литосфера Земли

Рис.3. Инженерно-геономические широтные (А) и долготные (Б) разрезы планеты с позиций Катастрофоведения и Общей теории Земли

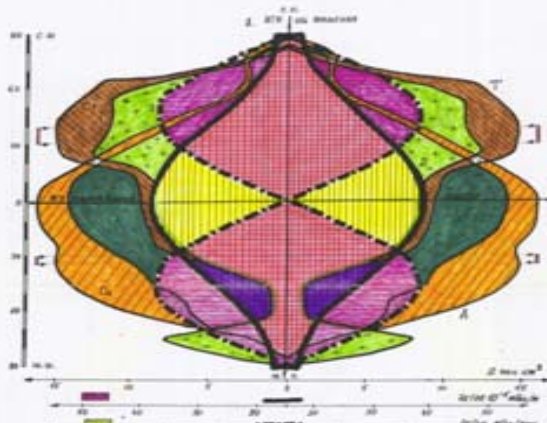


Рис. ИГН модель доказательств градиентно-гравитационной гетерогенной структуры формирования глобальных униформированных структур планеты Земля, т.е., геонимов и геотерриториальности, акваториальности и орогенности: Г, А, В, Е - 2D аксиоматика. 1 - ИГН модель планеты и оси вращения планеты Земля; 2 - график вертикального градиента силы тяжести Земли ( $g_{\text{в}}/\text{мил/сек}$ ); 3 - График (м) горизонтального градиента силы тяжести Земли ( $g_{\text{г}}/\text{мил/сек}$ ). Классометрическая корреляция ИГН модели Земли и ее геонимов (территориальности, акваториальности, орогенности) и геонимов градиента вертикальной и горизонтальной силы тяжести Земли доказывает фундаментальность и универсальность ИГН модели как закона и

Рис.4. Базовая ИГН модель по широтной генетической квази-симметрической корреляции геонимов территориальности и акваториальности с геонимами по широтного распределения горизонтальной и вертикальной компонент Эемли. силы тяжести





## ИГН модель оценки георисков для территории Евразии

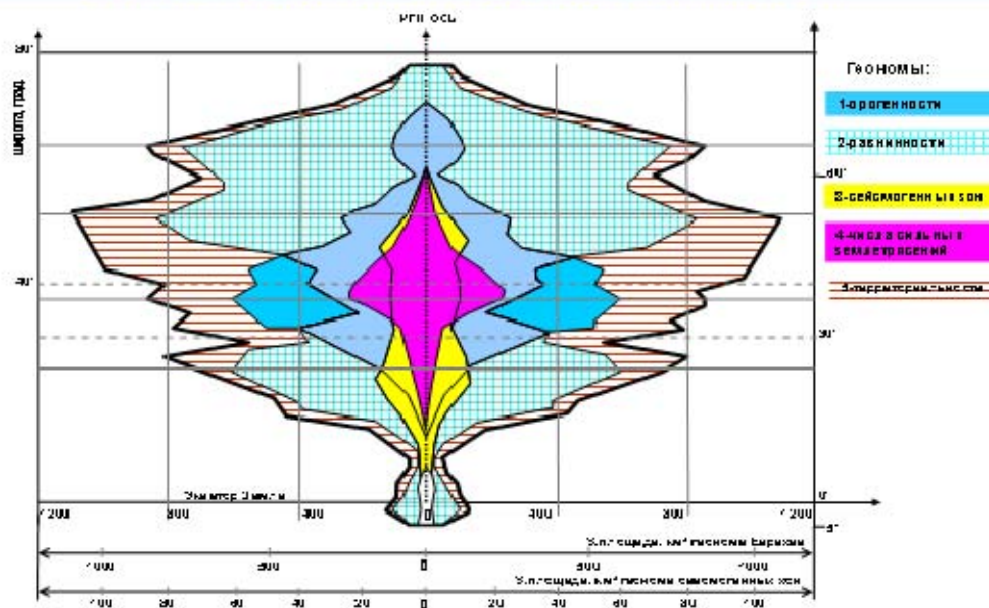


Рис.7. Инженерно-геономическая модель оценки сейсмической опасности и прогноз землетрясений на территории Евразии ( по Усупаеву Ш.Э.)

измерения с помощью МГР-01С естественных электромагнитных импульсов (ЕИЭМПЗ) исходящих из недр Земли, Малышковым Ю.П. и Малышковым С.Ю.(2007-2009гг.) позволили им установить траекторию орбитального движения твердых ядер внутри жидкого [15]. Малышковым Ю.П. и Малышковым С.П.(2009), обнаружено эксцентричное вращение внутреннего ядра, в пределах внешнего жидкого ядра. При этом инструментально, с помощью сети представленной из около 35 многоканальных геофизических станций МГР – 01 С, прослежен вращающийся с угловой скоростью до 1,1 градуса в год, путь смещения твердого ядра, которое отклонено от геометрического центра Земли и совершает под углом 45 градуса к Солнцу, внутри внешнего-жидкого ядра собственное орбитальное движение. Объединенные с различной степенью контактирующие друг с другом шесть твердых ядер нашей планеты, периодически попеременно пересекают экватор планеты перемещаясь то в северное, то в южное полушария Земли.

Превышающие угловую скорость вращения Земли, со скоростью 1,1 градуса в год, орбитальное движение твердых ядер в ежесуточном, ежемесячном и ежегодном пульсирующем, миграционном перемещении оказывают геодеформационные давления на вышерасположенные геосферы, включая астеносферу, литосферу, земную кору и разноланговые взаимодействующие друг с другом плит-тектонические структуры лика Земли. Из вышеприведенной ИГН модели Земли следует, что циклически-пульсирующие активные гео-деформационные процессы, вызывают на фоне новейших тектонических и современных движений, наиболее динамичные и энергоемкие естественные гео-волновые ритмы опасных изменений окружающей среды в приповерхностной части земной коры, предопределив закономерности и условия благоприятные для проявления различных геокатастроф, в т. ч. землетрясений, негативно воздействующих на объекты атомной энергетики, и устойчивость плотин ГЭС и водохранилищ.

Выявлено, что за счет вращения Земли зоны растяжения и сжатия геосфер начнут перемещаться друг за другом с суточной периодичностью. В свою очередь движение Земли по орбите вокруг Солнца, вызовет годовую периодичность, связанную с перемещением ядра в течение года из Северного в Южное полушарие. В результате суточного и годового вращения Земли зона возмущения перемещается по оболочке планеты с востока на запад по спирали. Витки спирали направлены по параллелям. Каждый виток, ровно через сутки, незначительно смещается относительно предыдущего витка к Югу или к Северу, в зависимости от того, в какое полушарие в это время года смещается ядро. В точке земной поверхности, находящейся в Северном полушарии, амплитуда напряжений максимальна летом и минимальна зимой. В Южном полушарии картина сезонного изменения механических напряжений имеет обратные значения.

При приближении зоны «втягивания», геоструктурные элементы уплотняются за счет приближения и сжатия друг с другом. При этом уменьшается их относительная подвижность и одновременно снижается интенсивность потока электро-магнитных импульсов. Зона и глубина приема электро-магнитных импульсов стационарной станцией МГР 01С наблюдения составляет десятки километров (Малышков и др. 2000).

Твердое ядро Земли никогда не бывает в центре планеты. Наиболее близко оно подходит к геометрическому центру в апреле и сентябре (Рис.1). Трасса движения ядра несимметрична по отношению к геометрическому центру Земли. Наибольшие смещения ядра от центра наблюдаются в июле-августе и в феврале, причем смещения летом превышают февральские значения (Рис.3). Угловая скорость вращения ядра превышает угловую скорость вращения оболочки Земли. По данным Малышкова Ю.П. и др.(2005) составляет 1,1 градуса в год, а затем и американских ученых ядро вращается быстрее на 0,3-0,5 градуса в год [Zhang и др. 2005] пробега. Имеющиеся в литературе расчетные значения варьируют от вышеназванных 0,3 до 2,8 градуса в год [Авсюк и др. 2001; Zhang и др. 2005].



Максимальные смещения ядра Земли регистрируются МГР 01 С в феврале и июле-августе. В эти периоды года взаимодействие ядра и нижней мантии максимальные, т.е. более быстрое угловое вращение ядра раскручивает вращение оболочки Земли.

Сезонные изменения угловой скорости вращения Земли, полученные в [Сидоренков 2002] путем осреднения астрономических данных за 1962-2000 г.г. показывают, что именно в феврале и июле-августе угловая скорость вращения Земли достигает максимальных значений. Положение минимальных значений угловых скоростей вращения Земли в мае и декабре, указанных в работе [Сидоренков 2002] подтверждается инструментальными измерениями МГР 01 С т.е. ядро приближается к своим крайним положениям, начинается процесс взаимодействия ядра и нижней мантии, раскручивающий впоследствии оболочку Земли. Во второй половине августа меняется также направление движения ядра, т.к. оно начинает удаляться от Солнца, перемещаясь в ночную часть земного шара под углом  $45^{\circ}$  к направлению орбитального движения Земли вокруг Солнца. В конце февраля ядро достигнет своего второго крайнего значения, и процесс сменит направление. Ядро начнет тормозить движение Земли по орбите и уменьшать радиус орбиты. Это согласуется с общеизвестными фактами: максимальная скорость движения Земли по орбите в перигелии (3 января) и составляет  $30,287 \text{ км с}^{-1}$ , а минимальная в афелии (5 июля)  $29,291 \text{ км с}^{-1}$ . Движение ядра по своей годовой орбите носит пульсирующий характер. Ядро то ускоряется, то замедляет такое движение. С конца февраля по июль месяц ядро смещается в направлении 16 часов солнечного местного времени, что формирует максимальные растягивающие напряжения в земной коре, усиливающие генерацию импульсов ЕИЭМПЗ. Именно в это время суток за движущимся ядром возникнет зона разряжения, которая создает самый глубокий минимум ЕИЭМПЗ с 4 до 10 часов утра, появляющийся в апреле и исчезающий в конце октября. Наряду с этим происходит смещение ядра в северные широты, приближение ядра к точке наблюдения. Приближение ядра объясняет сезонное возрастание интенсивности ЕИЭМПЗ с конца февраля по вторую декаду июля (Рис.1-3). В конце августа, направление движения ядра окончательно меняется на противоположное, оно начинает смещаться в южные широты, при этом появляется компонента направленная на 2 часа солнечного местного времени. Увеличивается интенсивность ЕИЭМПЗ в ночное время суток. За движущимся ядром возникнет зона сжатия и появляется глубокий минимум ЕИЭМПЗ в зимнее время в 16 часов местного времени.

Твердые объединенные ядра, под углом 45 градусов по отношению к Солнцу, совершают в течение года собственное орбитальное вращение, оказывая гео-механические деформационные воздействия на вышерасположенные мантийные сферы, астеносферу, литосферу, земную кору и близ-поверхностные комплексы геологических тел (Рис.3). Ядро то ускоряет движение Земли по орбите вокруг Солнца, то замедляет такое движение. Оно удерживает равновесные расстояния от Солнца, перемещаясь относительно геометрического центра то в сторону Солнца, то в противоположном направлении. Взаимодействуя с нижней мантией, ядро периодически раскручивает Землю, поддерживая скорость суточного вращения. Именно ядро, смещаясь, то в Северное, то в Южное полушарие, поддерживает постоянным наклон оси вращения Земли  $23^{\circ} 27'$ . При орбитальном движении, глобальные гео-деформационные процессы, выдавливания вещества с одновременным втягиванием частей геосфер с противоположной стороны планеты, ежемесячно формируют эндогенные напряжения со сжатием и растяжением перемещающимися инерционно в виде импульсного смещения, через плоскость экватора попеременно то в южное, затем северное полушария Земли (Рис.3).

Поскольку объекты атомной и ядерной промышленности, безусловно расположены на более или менее уязвимых участках, риски аварий сохраняются повсеместно, в связи с вышеприведенными ИГН закономерностями деформации геосфер.

По разработанной и описанной выше ИГН модели планеты Земля, в пределах мигрирующих сфер влияния активного исходящего из недр (ядер планеты) попеременного гео-механического давления на нижнюю мантию, движущиеся в форме округлых сегментов территории выпирания (выдавливания), в вышерасположенной близ поверхностной зоне Земли, приводят к протеканию противоположного по направлению сопряжено-гравитационного процесса втягивания и скупивания (т.е. сжатия) частей литосферных плит, а также их наиболее податливых составных гео-блоков и тектонических массивов грунта. Одновременно, на противоположной геосферной стороне, вследствие воздействия сил гравитационного ослабления над контактом внешнего ядра с нижней мантией, возникает сферический сегмент втягивания мантии в пределы ядра, а выше по разрезу геосфер в приповерхностной части земной коры из-за дефицита массы активизируются процессы выдавливания и расширения, вследствие получения большей степени свободы и подвижности, при этом наблюдается влияние сил растяжения и разупрочнения границ между литосферными плитами и различного ранга разломами.

Модели сейсмического очага характеризуются комплексом следующих процессов и явлений: образованием разломов и мгновенных подвижек, реологической неустойчивостью пород, внезапными фазовыми переходами, плавлением пород при сдвиге (термические напряжения), влияние поровых растворов, дислокационных деформаций, разгрузки тектонических напряжений в Земном шаре.

#### **Геокатастрофы на примере оценки воздействия землетрясений несущих угрозу возможных атомных аварий ядерным и радиоактивным объектам**

Гео-катастрофы, сосуществуют в качестве неотъемлемого звена эволюционного пути развития Мира, и обладают особыми преобразующими окружающую геологическую среду движущими силами. Поскольку будущее Мира прогнозируется, соответственно катастрофы медленного и быстрого характера развития прогнозируемы по месту, энергии и времени их проявления. При этом наиболее слабым звеном прогнозов, является например, для землетрясений, ожидаемое точное время их возникновения.

Землетрясения ощутимые и катастрофические по ИГН категории уязвимости происходят только на 21 % поверхности нашей планеты. Причем из 21 % поверхности планеты где наиболее активно проявляются землетрясения,

78 % площади находятся под водой, т.е. относятся к акваториальным зонам где возможно образование цунами, а оставшиеся 22 % расположены на суше, т.е. относятся к территориальным сейсмоопасным зонам. Таким образом с позиций ИГН категорий уязвимости от землетрясений наша планета по прогнозу местоположения в 3,6 раз больше охвачена сейсмическими процессами в океанах, в сравнении с сушей. В качестве примера, приведем сильнейшее землетрясение вызвавшее цунами и разрушение атомных электростанций на восточном побережье Японии. При определении ИГН местоположения сейсмоопасных площадей, из вышеопределенных 21 %, до 12 % сосредоточены в южном и, оставшиеся 9 % в северном полушарии, что свидетельствует в 1,33 раз более активном развитии сейсмических процессов в южном океаническом полушарии Земли. Одновременно акваториальные сейсмоопасные зоны составляют в южном 52 %, и северном полушарии 25 %. Соответственно территориальные в южном менее 5 %, и северном полушарии до 18 %. Океаны, точнее их СОХ (срединно-океанические хребты) южного полушария, по площади охваченной сейсмическими процессами в 2 раза активнее по сравнению с океанами северного полушария. Суша северного полушария в 3,6 раз по площади более сейсмически активна в сравнении с территориями южного полушария. К ИГН закономерностям относится преобладание площадей сейсмически активных зон акваториальных над территориальными в северном полушарии в 1,4 раза, южном в 10,4 раза. Таким образом, прогнозируемость местоположения зон землетрясений с позиций их оценки в качестве категорий уязвимости, является достаточно обоснованной, и вытекает из ИГН моделей сейсмозон.

Снижение потерь и ущербов от сейсмических бедствий на планете Земля и ее субчастях в настоящее время осуществляется по не менее двум приоритетным путям развития: 1. сейсмостойкому строительству, базирующейся на карте сейсмического микрорайонирования, 2. предупреждению риска от землетрясений, основанного на системе раннего оповещения населения и прогнозирования сейсмokatastroф. Аналогичные действия проводятся для таких энергетических объектов как АЭС, ГЭС, ГРЭС и ТЭС.

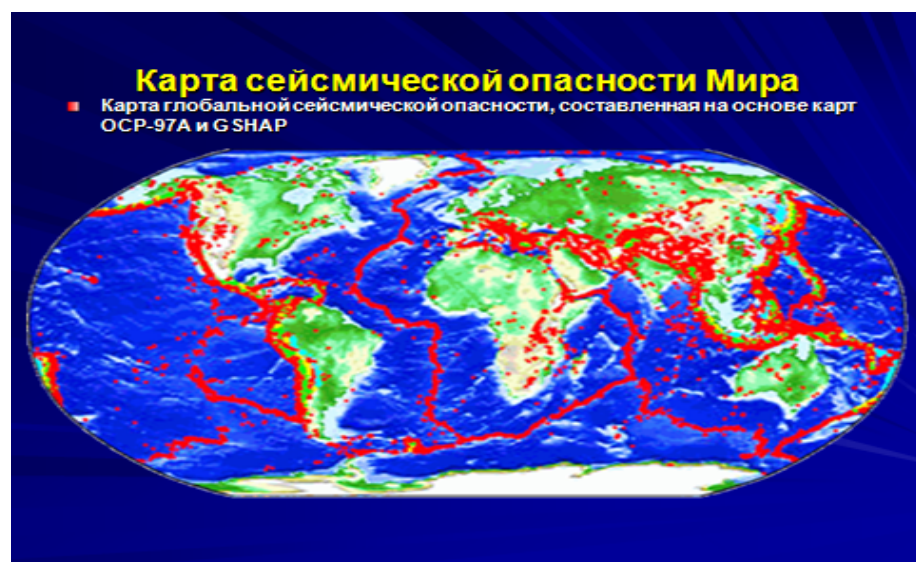


Рис. Карта оценки сейсмической опасности и риска Мира



Рис. График периодичности проявления сейсмической активности на территории Кыргызстана

На ИГН моделях даны, закономерности распределения мелко-, и широкофокусных сильных землетрясений, как на суше, так и в океанах формирующих цунами, что имеет воздействия на АЭС и ГЭС.

С позиций «Инженерной геологии» и «Катастрофоведения», рассмотрены причины, и прогностические аспекты опустошительного землетрясения произошедшего 11 марта 2011 года в Японии, с предложениями более безопасного размещения АЭС в Японии и различных странах Мира.

Природные энергоресурсы на Земле распределены неравномерно, в связи с чем планирование и рациональное размещение энергетических объектов (ГЭС, ТЭЦ, АЭС геотермальных, гелио- и ветровых станций) представляется актуальной проблемой XXI века.

В XXI веке только разработка и промышленное внедрение новейших технологий по вторичной переработке радиоактивных отходов откроет широкий путь к переводу мировой энергетики к атомному производству. При этом закрывается вопрос необходимости захоронения радионуклидов в районах компактного проживания населения [1-9].

В настоящее время в созданных на планете полигонах складирования радиоактивных отходов, в прудах-хвостохранилищах для жидких и пульпообразных отходов, в полостях образуемых искусственно ядерными подземными взрывами, в могильниках для захоронения наиболее опасных твердых и жидких отходов, в отработанных горных выработках, а также в специально оборудованных бункерах и туннелях сосредоточены миллиарды тонн радиационно опасных и химически отравляющих веществ.

По данным МАГАТЭ в настоящее время из 31 стран мира использующих ядерную энергетику, на долю 10 стран приходится 81% энергоблоков АЭС, соответственно 83% вырабатываемой энергии (т.е. 351327 Мвт) приходится на долю развитых государств. При этом следует подчеркнуть, что современные технологии позволяют уран добывать из таких руд, в которых его содержание превышает 1/1000.

Вследствие нехватки энергии, а также истощения запасов и недоступности радиоактивных руд в глубоких недрах Земли экономически оправданной будет и появляются тенденции и попытки использования менее кондиционных руд в т.ч. из хвостохранилищ и отвалов горных пород с ещё меньшим содержанием радиоактивного топлива.

При разработке в XXI веке новых технологий из гранита (как широко распространенных горных пород) экономически выгодно будет извлечение урана, которое содержится в среднем в количестве 210<sup>5</sup>. При этом оценено, что каждая тонна гранитного сырья может обеспечить извлечение электричества равного сжиганию 8 тонн угля.

Проблема века состоит из двух задач: как добыть необходимое по количеству радиоактивное топливо из-за истощения богатых содержанием радиоактивных руд, так и последующей утилизации и нейтрализации высокотоксичных и излучающих отходов накопление которых становится глобальной и острой с каждым годом. Радиоактивную опасность на планете создают законсервированные и действующие предприятия, добывающие и перерабатывающие уран, объекты ядерного оружейного комплекса, атомной энергетики, ядерного обеспечения вооруженных сил и океанского атомного флота, районы проводившихся подземных ядерных взрывов. До сих пор районы и области, подвергшиеся радиационному загрязнению вследствие ядерных катастроф, являются зонами риска для проживающего населения [1-9].

По данным В.А. Акимова, В.Д. Новикова, Н.Н. Радаева (2001г.) на 9 АЭС и действующих энергоблоках России, большинство станций имеет высокую (более 65%) степень изношенности основных производственных фондов. При этом в 30-ти километровых опасных зонах проживает не менее 4 млн. человек. В силу недофинансирования, утечки умов в развитые страны, иных социальных причин производственная и технологическая дисциплина на АЭС требует повышения их безопасности [8].

К наиболее опасным, из-за их непредсказуемости и высокой динамичности, относятся функционирующие на более 250 кораблях и судах ядерные энергетические установки. В то же время из Военно-морского флота России списаны из эксплуатации более 150 атомных подводных лодок, а в 120 из них на 200 ядерных реакторах ядерное топливо общей активностью в несколько десятки миллионов Кюри отработанное ядерное топливо находится в невыгруженном состоянии [8].

Тем не менее современное общественное восприятие атомной (ядерной) энергии в первую очередь связано с гарантиями обеспечения безопасности её воздействия на население и окружающую среду. Интенсивный рост населения Земли и дефицит гидроэнергетических, нефте-газовых и угольных ресурсов предопределяют необходимость в качестве альтернативы использование в мирных целях радиационно-опасной ядерной энергии в виде технологии АЭС.

#### **ИГН базовая и тематические модели по широтного распределения сейсмичности и особенностей размещения опасных ядерных и радиоактивных объектов**

На основе составленной впервые карте-схеме распределения энергетических объектов Мира (ГЭС, ТЭЦ и АЭС), а также одновременно отдельно представленной карте-схеме размещения АЭС на планете Земля и распределения месторождений добычи урановых руд, разработаны инженерно-геономические (ИГН) модели прогнозирования радиационных и энергетических катастроф на планете Земля и её субчастях.

На базе разработанной ИГН методологии, а также составленных в результате преобразования тематических карт серий коррелируемых между собой (ИГН) планетарных и субрегиональных моделей, впервые приводятся для энергетических объектов (в т.ч. для радиационных и ядерных) прогностические сравнительно-аналитические оценки рисков.

Сравнительный анализ геономов по широтного распределения энергетических объектов, в том числе АЭС, а также месторождений добычи урановых руд с ИГН-моделью планеты Земля позволили выявить нижеследующие прогностические закономерности.

- На ИГН модели максимальные пики распространения энергетических объектов планеты Земля находятся на широтах 37-38° с.ш. (в том числе ГЭС и ТЭЦ). Максимальный пик распределения АЭС на планете Земля находится на 47° с.ш. В целом АЭС построены преимущественно (96%) в северном полушарии на широтах от 17° до 67° с.ш. (на южное полушарие от 23° до 32° ю.ш. приходится 4% АЭС).

- В прогностическом отношении максимум концентрации энергетических объектов приходится на широты развития планетарного пояса разломов 30°-40° с.ш., что сопряжено с риском глобального масштаба, тем более пик распределения количества происходящих и ожидаемых сильных неглубоких землетрясений на территории фиксируется по ИГН модели на 37° с. ш.

- Максимальный пик распределения крупных сейсмоопасных городов Мира расположен на широте 43°-47° с. ш., т.е. совпадает с широтой наибольшего числа распределения АЭС на планете Земля, что соответственно сопряжено с позиций прогноза радиационных и энергетических катастроф с риском для населения и окружающей природной среды.

Риск глобального масштаба для населения Мира исходит от выявленной корреляции максимальных пиков геонотов распределения энергетических объектов, в т.ч. АЭС с планетарным поясом разломов и сейсмоопасных крупнейших городов на Земле.

Составленные, на основе преобразования до сих пор считающихся конечным продуктом исследований карт, на примере плотности распределения населения и сейсмоопасных городов Мира с населением более 1 млн. человек, так называемые геоноты населенности и сейсмоопасности городов, позволили установить нижеследующие особенности.

1. Геонотом по широтного распределения населенности планеты имеющий в уменьшающемся порядке максимальные пики на 30°с.ш., 52°с.ш. и 13° с.ш. свидетельствуют об их коррелятивности геонотам территориальности, территориальной орогенности и северо-полушарной горизонтальной компоненте силы тяжести Земли.

2. Геонотом по широтного распределения сейсмоопасных городов с населением 1 млн. человек и более имеет максимальные пики в уменьшающемся порядке на 45° с. ш., 32° с. ш., 15° с. ш. и 5° с. ш., что указывает на соответствующие высокие риски проживания людей на установленных широтах.

На основе ИГН-методологии и одноименного моделирования подвергалось анализу распределение эпицентров сильных, с магнитудой  $M > 7$  неглубоких и глубоких землетрясений за 50-летний период времени.

На геонотах сильных неглубоких (менее 70 км) землетрясений максимальные пики по широтного распределения числа сейсмокатастроф за вышеуказанный полувековой период времени в уменьшающемся порядке распределились соответственно: территориальные на 35° с. ш., 25° с. ш., 18° с. ш. (преимущественно в северном полушарии планеты), экваториальные 3° ю. ш., 5° с. ш., 35° с. ш., 50° с. ш.

На геоноте сильных глубоких землетрясений с гипоцентрами 70-300 км территориальные сейсмо-катастрофы в уменьшающемся порядке закономерно максимальными пиками проявляются на соответствующих широтах 20° ю. ш. и 35° с. ш., затем 8° ю. ш. и 17°с.ш.

Геоноты сейсмичности указывают на активное преобразование неглубокими сильными землетрясениями территорий в северном полушарии, и одновременно на масштабные изменения производимые подводными глубоководными сейсмо-катастрофами на границах литоферных плит в под океанических недрах Земли.

Использование разработанной ИГН-методологии и одноименных ИГН-моделей от планетарного масштаба для меньших по размерам площадей на поверхности планеты показало, что ИГН-ось вращения планеты в субширотном отношении проектируется и сохраняет свое фундаментальное квази-симметричное сравнительно-аналитически уравнивающее и корреляционно объединяющее свойство на примере нижеследующих уровней субчасти Земли: континента Евразии, территории Кыргызской Республики и любых по размерам и конфигурации других поверхностей планеты.

На ИГН-модели Евразийского континента как субчасти Земли представлены полученные преобразованием различных тематических карт по широтное распределение нижеследующих геонотов: территориальности, орогенности, равнинности, сейсмогенных зон, сильных землетрясений и энергетических объектов.

Максимальные пики по широтного распределения геонотов орогенности и сильных землетрясений в Евразийском континенте имеют тесную квази-симметрично-корреляционную связь на широтах 38-39° с. ш. Максимальные пики геонота сейсмогенной зоны Евразии в уменьшающемся порядке расположены на 22°30' с. ш., 47° с. ш. и 39° с. ш.

Геоноты распределения АЭС на ИГН модели Евразии указывают на максимальные пики их сосредоточения в пределах широт 50-55° с. ш., ТЭЦ - 35-40° с. ш. и ГЭС - 35-40° с. ш., а месторождений добычи урана на 30-35° с. ш.

#### **ИГН карты и модели оценки рисков и прогнозирования чрезвычайных ситуаций для территорий Кыргызстана и Таджикистана.**

На ИГН-модели Кыргызской Республики, являющейся субчастью Земли, представлены геоноты: территориальности, долиненности, орогенности и землетрясений.

Максимальные пики по широтного распределения геонота землетрясений на территории Кыргызской Республики в уменьшающемся порядке расположены на 42°30' с. ш., 39°20' с. ш. и 41°53' с. ш., а геонота размещения радиоактивно-опасных хвостохранилищ и горных отвалов на 41°17' 42°16' с. ш.

На планетарной ИГН модели, максимальный пик размещения атомных электростанций приходится на широты от 48 до 50 градусов северной широт

К прогнозу местоположения землетрясений относится, закономерность развития большинства сейсмических катастроф при границах 12 литосферных плит, испытывающих как вертикальные (изостазийные), так и горизонтальные (тектоника плит, вследствие тепловой конвекции мантии).

Как правило, слабые и умеренные землетрясения с глубиной очага до 20 км., проявляются в районах расположения СОХ (срединно-океанических хребтов) Очаги более сильных по интенсивности землетрясений имеют место в зонах размещения трансформных разломов

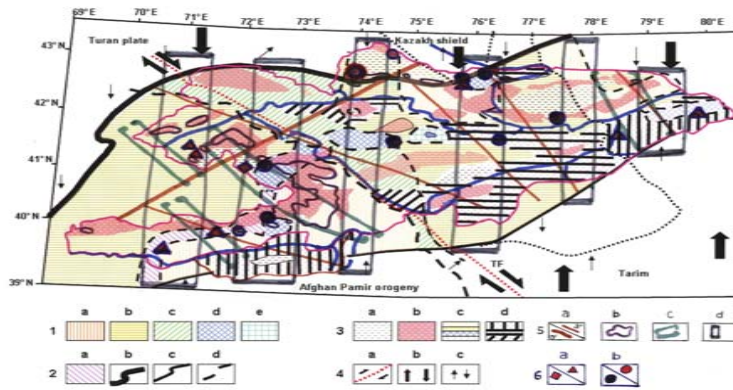


Рис.8 ИГН Карта размещения радиоактивных и токсичных хвостохранилищ и горных отвалов на территории Кыргызстана, несущих угрозу трансграничным странам Центральной Азии.

Самые сильные землетрясения, одновременно они являются самыми глубинными с очагами вплоть до 700 км., получили развитие в зонах субдукции. В отношении прогнозирования степени риска (СР) а именно интенсивности (силы, магнитуды, энергии, пиковых ускорений) землетрясений, в пределах выше от-картированных и занимающих около 21 % сейсмоопасных различных по категории уязвимости зон сейсмичности территорий, выделяются подзоны подразделенные по их степени риска. Подзоны степеней риска, выделенные на прогностической карте, группируясь соответственно друг с другом, входят в выделенные территории по категории уязвимости от сейсмичности.. Составлена ИГН планетарная карта оценки и прогнозирования категорий уязвимости, степеней риска и уровней опасности от сейсмо-катастроф, с использованием пиковых ускорений, с оценкой риска землетрясений на предстоящие 50 лет. А также определено место положение и роль региона Центральной Азии.

С позиций временного прогноза, при условии допущения равномерного распределения землетрясений на поверхности планеты вероятность их проявления составляет 1 сейсмо-событие на площади 1 кв. км. в течение 5000 лет. С позиций ИГН категории уязвимости в связи с локализацией площади сейсмоопасных зон на 21 % поверхности Земли, вероятность ежегодного повторения землетрясений на площади 1 кв. км. составляет 1 сейсмическое событие в 1000 лет. Однако прогноз времени ожидаемых землетрясений тем выше, чем чаще землетрясение. Соответственно на примере территории Кыргызстана ежегодно происходит по статистике ежегодно до 1 землетрясения на площади около 60 кв. км., т.е. площади (7,7 на 7,7) км. кв. или 2 ощутимых сейсмических события на площади около 6000 кв. км. (77 на 77) км. кв., соответственно до 2 разрушительных сейсмо-катастроф на территории площадью 98 000 кв. км. (313 на 313) км. кв.

ИГН временной прогноз, для территории Кыргызстана составляет 2 землетрясения на площади 1 км. кв. за 100 лет, 1 разрушительное сейсмо-событие на 1 кв. км. площади за 10 000 лет, соответственно 1 катастрофическое землетрясение ан площади 1 км. кв. за 50 000 лет. По статистике вероятность повторения катастрофического землетрясения с позиций ИГН на территории Кыргызстана, составляет ежегодно одно землетрясение на площади (226 на 226) км. кв.

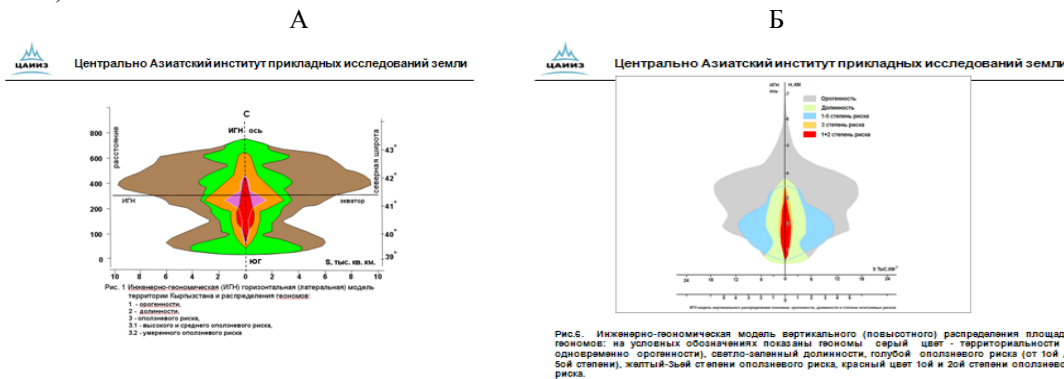


Рис.9. ИГН модели по широтного (А) и по высотного (Б) распределения геонатов оползневого риска для территории Кыргызстан



А.

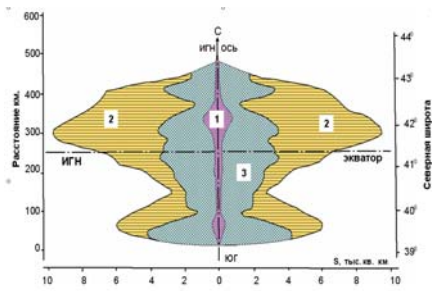


Рис.1 Инженерно – геонимическая (ИГН) горизонтальная(латеральная) модель территории Кыргызского Тянь – Шаня и распределение геонимов: 1 – оледененности, 2 – орогенности, 3 - долининости

Б.

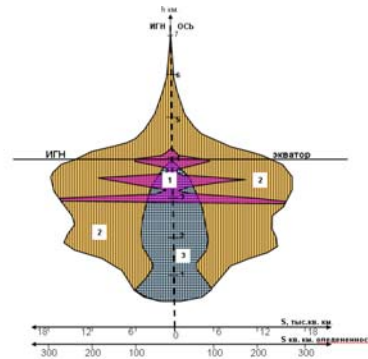


Рис.2 Инженерно – геонимическая (ИГН) вертикально – высотная модель территории Кыргызского Тянь – Шаня и распределение геонимов: 1 – оледененности, 2 – орогенности, 3 - долининости

Рис.10.. ИГН модели по широтного (А) и по высотного (Б) распределения геонимов оледененности и оценки риска деградации ледников в процессе глобального потепления климата для территории Кыргызстана

А.

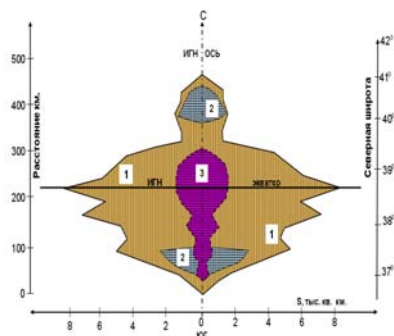


Рис.3 Инженерно – геонимическая (ИГН) модель латерального поширотного распределения геонимов для территорий Таджикистана : 1 –орогенности 2 – абсолютных отметок до 1км. (долининости), 3 – оледененности

Б.

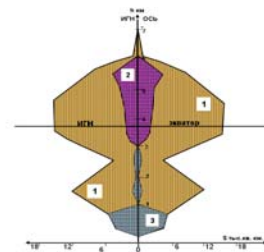


Рис.4 Инженерно – геонимическая (ИГН) модель территории Таджикистана с высотным распределением геонимов: 1 – территориальности, 2 – оледененности, 3 – долининости на примере Таджикистана

Рис.11. ИГН модели по широтного (А) и по высотного (Б) распределения геонимов оледененности и оценки риска деградации ледников в процессе глобального потепления климата для территории Таджикистана.

**Унифицированная 12 мерная ИГН шкала оценки рисков и прогнозирования чрезвычайных ситуаций природного, техногенного и экологического характера.**

В качестве одной из основ ИГН, создана усовершенствованная «Унифицированная шкала оценки и прогнозирования геокатастроф», адаптированная для исследований, как опасных экзогенных процессов и явлений, так и землетрясений Мира. Данная шкала, модернизирована на основе Межгосударственной для стран СНГ нормативного документа (МСН-96) по использованию единых индикаторов и критериев оценки различных наиболее распространенных опасных процессов и явлений, в целях картографической оценки рисков бедствий (Рис.12).

а). Уязвимость-это мера возможной потери свойств элементов риска (по Рогозину А.Л.-2000г). По определению Акимов В. А..2001г, уязвимость является свойством объекта противоположное стойкости, т.е. критической нагрузке (уровня поражающего фактора начиная с которой начинается разрушение). В определении данном( Коффом Г.Л и др. 2000г.) под уязвимостью понимается свойство геологической среды утрачивать свои экологические функции (геодинамические, геохимические, геофизические) в определенном диапазоне негативных воздействий, или это защищенность геологической среды, т.е. способность сопротивляться опасному воздействию. В целом по неполным данным уязвимость подразделяется на: 1.социальную, 2.физическую, 3. функциональную, 4. конструктивную, 5. прогнозную, 6. наблюдаемую, 7. экологическую, 8. экономическую, 9. прямую, 10. косвенную, 11.конвенционную, 12. абсолютную, 13. относительную. При этом уязвимость имеющая множество вышеуказанных разновидностей не имеет увязки с риском бедствий.

**Уязвимость**, с позиции ИГН и «Катастрофведения» получила тесную связь с рисками и опасностью, является неотъемлемым компонентом окружающей природной среды (планет, солнечной системы, Галактик, Вселенной), включая как неживые так и живые объекты и субъекты Мира. В целом с мировоззренческих позиций уязвимость сопоставимо с верой существования объективной реальности. Определяется в первую очередь вера как признание реальности местоположением человека, и в зависимости от этого являются в качестве категорий уязвимости по отношению к тем или иным условиям дискомфорта, кризисным обстановкам и бедственным ситуациям. С ИГН позиции и «Катастрофведения» уязвимость выступает, в ранге категорий уязвимости (КУ), в первую очередь характеризует пространственную приуроченность стихийного бедствия. Выделяется для картирования и прогнозирования геокатастроф, в т.ч. землетрясений три КУ.(I-Бедствия, II-Кризиса, III-Дискомфорта ).

б). Риск (опасность) - (по Воробьеву Ю.Л. и др.-1997), это вероятность появления неблагоприятного события, при этом риск является двумерной величиной, включающей как вероятность наступления нежелательного случайного события, так и связанные с ним потери. Риск-(по Акимову В.А. 2001г.)-это возможность того, что человеческие действия или результаты его деятельности приведут к последствиям, которые воздействуют на человеческие ценности. По данным (Vulnerability and Risk Assessment, UNDP,1991) риск , это опасность умноженная на уязвимость. По определению ГОСТ Р. 22.0.11-99), риск-это вероятность возникновения неблагоприятных ( негативных) последствий воздействия поражающих факторов источников природных ЧС на население, территорию и окружающую природную среду. Риски подразделяются на 1. индивидуальный, 2. коллективный, 3. социальный, 4. вынужденный, 5. добровольный, 6. мотивированный, 7. немотивированный. 8. видовой, 9. бытовой, 10. экологический, 11. техногенный, 13. национальный, 14.этнографический, 15. планетарный, 16. космический.

**Риск**, с позиций ИГН и «Катастрофоведения», сопряжен в соподчиненном аспекте с уязвимостью, и преимущественно определяет степень надежды человека, на Его выживаемость от проявлений опасных изменений, возможных воздействий различной интенсивности, силы и энергии, в исследуемой природной среде. Иерархически все выше выделенные три КУ, подразделяется на соподчиненные степени риска (СР) которые характеризуют энергетические особенности катастрофического проявления изменений природной среды. СР показывают, каким образом в пределах установленных категорий уязвимости в качественном, так и количественном отношении распределены ожидаемые энергии ( интенсивности, силы ) проявляющейся чрезвычайной ситуации.

в). Опасность, в чрезвычайной ситуации по ГОСТ Р 22.0.02.-94), это состояние, при котором создалась или вероятно угроза возникновения поражающих факторов и воздействий источника чрезвычайной ситуации на население, объекты народного хозяйства и окружающую природную среду в зоне чрезвычайной ситуации. Опасное природное явление-событие природного происхождения или результат деятельности природных процессов, которые по своей интенсивности, масштабу распространения и продолжительности могут вызывать поражающее воздействие на людей, объекты экономики и окружающую природную среду. Опасность (опасные явления)-по (An Overview Disaster Management. Edition. UNDP . 1992)- это редкое или чрезвычайное событие, а также вероятность события в природной среде или среде, созданной человеком техногенная среда ), негативно влияющее на человеческую жизнь, собственность или деятельность до размеров, вызывающих бедствие. Опасности подразделяются на: 1. природные, 2. техногенные; 3.биолого- действующие; 7. случайные; 8.долговременно-действующие; 9.распределенные; 11.стационарные; 12 детерминированные.

**Опасность** в ИГН и «Катастрофоведении», в отличие от выше обоснованных уязвимости и рисков, характеризует как правило временные аспекты объективной реальности. При этом, уязвимый и проживающий в мире рисков, человек обязан любить жизнь, оберегать и защищать Ее от внутренних и внешних негативно воздействующих различных уровней опасностей. Таким образом, иерархически взаимоувязанное с КУ и СР, следующее звено ИГН прогнозирования геокатастроф, именуется уровнем опасности (УО).

Каждая из вышеприведенных соподчиненных друг с другом ИГН картографически отображаемых в качестве предупреждающих характеристик опасных изменений природной среды: КУ-категории уязвимости, СР-степени риска, УО-уровни опасности, соответственно несут в себе в различной пропорции три наиболее фундаментальные свойства материального Мира, т.е. каждая из них более чем на 60% несут в себе следующие формы нагрузки: пространства -КУ, энергии-СР и времени -УО. Соответственно с позиций ИГН предупреждения и прогнозирования: КУ- (отвечает на вопрос достоверности, где) определяет местоположение прогнозируемого бедствия, СР-(отвечает на вопрос надежности, какой) определяет силы, энергию или интенсивности катастрофы, а УО- (отвечает на вопрос любви к сохранению жизни,, когда) предупреждает время ожидания чрезвычайной ситуации. В связи с тем, что КУ, СР, УО содержат в своем составе, все три фундаментальных компонент Мира, а именно в разной пропорции пространственную, энергетическую и временную характеристики, с ИГН позиций их генетического родства, логистики и научного обоснования получают возможность быть взаимоувязанными друг с другом по разработанной и предлагаемой методологии ( Рис.4) Скорости современных движений в перечисленных выше горных сооружениях Высокой Азии, которые подвержены наряду с вертикальными, горизонтальным и поливергентным (геоволновым) движениям земной коры, варьируют в пределах от 0,3 до 20-30 мм/год и более, а литосферных плит соответственно от 1,3 до 5,1 мм/год и более, причем темпы северо-направленного движения Индо-Австралийской литосферной, сжимающей территорию Кыргызстана плиты, в четыре раза превышает встречное движение Евразийской плиты.

На составленной инженерно-геономической модели Евразийского континента (см. Рис.7) с позиций предупредительной оценки сейсмического риска, выделены взаимодействующие по площади поширотного распределения нижеследующие геонемы: 1.Интегральной (закрашен голубым цветом), дифференциальной (горизонтальные штрихи коричневого цвета) орогенности, 2. Интегральной (заштрихован квадратами зеленого цвета), дифференциальной (внешние контуры модели, линии черного цвета) долинности, 3.Сейсмогенных зон (закрашен желтым цветом), 4.Числа сильных землетрясений (закрашен в красный цвет). Из ИГН модели в прогнозном отношении, максимальный пик сильных землетрясений, приходится на 38 градуса северной широты, имеющей тесную корреляцию с максимальным пиком геонема орогенности. Исследуемые территории Кыргызстана и Таджикистана расположены по ИГН модели (Рис.7), именно в пределах максимального пика распределения геонема сейсмичности и, его зоны наиболее активного влияния от 35 градусов до 43 градуса северной широты. Из карты-схемы рисунка 2, следует ожидать в прогностическом временном отношении ожидаемые активизации землетрясений в пределах выделенных 7 сейсмоопасных зон, во 2-ой фазе 2010 - 2013 годах ( а на юге Кыргызстана в 2012 году) и третья фаза 2016 – 2019 гг. Проведенный нами анализ, по данным каталога землетрясений Института сейсмологии



НАН Кыргызстана показало (Рис.14-16 и 17), что за историческое время произошло семь сейсмических катастроф с интенсивностью до 11 баллов и более,

В течение 276 лет, т.е. в среднем по статистике через каждые 39 лет. Фактически разброс реального времени произошедших сейсмодатроф составляет от 3 до 173 года. В пространственном отношении из 7 сильнейших землетрясений, 11 и более балльной интенсивности, 5 расположились вдоль северной границы Тянь Шаньского орогена, с гипоцентрами в интервале 25 - 40 километра, с магнитудами от 7,4 до 8,3. По анализу помесячного их многолетнего распределения, землетрясения произошли, в течение ноября-февраля месяцев, за исключением Суусамырского произошедшего 19 август 1992 года.

Основное число разрушительных землетрясений приходится при этом на Чуйскую область Кыргызстана. Картографический анализ распределения 8-9 и 7-8 балльных по интенсивности их проявления землетрясений свидетельствуют, что в прогностическом плане из 17 сейсмических катастроф 12 (т.е. 75 %) трассирует северные границы Тянь-Шаньского орогена (более 50% приходится на Чуйскую область), а оставшиеся 25% приходятся на южные границы описывающие Гисаро-Кокшаальский важнейший глубинный разлом и соответственно Алайский и Памиро-Алайский регионы.

Прошло более 16 лет со дня создания учеными Института сейсмологии НАН КР Мамыровым Э. и Омуралиевым М. (1994г.) по заказу МЧС Кыргызстана, первой карты оценки сейсмической опасности в масштабе 1: 1 000 000 (Рис.4), для территории Кыргызстана и приграничных с ней районов. Выше указанная карта долгосрочного предупреждения сейсмодатроф, с нанесенными на ней 64-РОЗ (районами ожидаемых землетрясений), относится к разряду прогностных. Проведенный анализ за истекшее время т.е. более 16 лет показал достаточно большую достоверность прогноза местоположения землетрясений до 75 – 80%.

**ИНЖЕНЕРНО-ГЕОНОМИЧЕСКАЯ (ИГН)**  
**УНИФИЦИРОВАННАЯ НОРМАТИВНАЯ ШКАЛА ОЦЕНКИ И ПРОГНОЗИРОВАНИЯ СТИХИЙНЫХ БЕДСТВИЙ**      Таблица № 4

ИГН шкала	КАТЕГОРИИ УЯВЛИМОСТИ (КУ)																							
	I. БЕДСТВИЙ				II. КРИЗИСА				III. ДИСКАМФОРТА															
	I. Катастрофически большая		2. Бедственно- большая		1. Кризисно- большая		2. Предельно- большая		1. Дискомфортно- большая		2. Дискомфортно- малая													
	УРОВНИ ОПАСНОСТИ (УО)																							
ИГН индикаторы	а. Катастрофически высокий		в. Бедственно- высокий		г. Угрожающе- высокий		д. Опустошительно- высокий		а. Критически- высокий		в. Разрушительно- высокий		с. Очень- высокий		д. Высокий		а. Средний		в. Умеренный		с. Низкий		д. Региструемый	
	МНТКС - Межгосударственные нормы и правила категорий опасности природных процессов, с данными и изменениями. Условие на Ш.Э.(2009г.)																							
Код 2 02 02																								
О П О Л З Н И																								
Наименование индикатора	послабее	более-застыло-большее	около-маж	очень-большее	больше-	среднее	умеренное	незначительное	малое	небольшое	очень-малое	среднее	большое	очень-большое	максимальное									
S, % площади пораженности территории	более 91	90-61	60-31	30-21	20-11	10-5	5-3	2-1,1	1-0,6	0,5-0,3	0,2-0,1	0,1-0,06	0,05-0,021	0,02-0,011	0,01-0,006	0,005-0,001	менее 0,16	менее 0,005	менее 0,001	менее 0,0001	менее 0,00001	менее 0,000001		
S, км кв. - площадь разрушенного производств на одном участке	более 5	5-3,1	3-1,1	1-0,6	0,5-0,31	0,3-0,21	0,2-0,11	0,1-0,06	0,05-0,021	0,02-0,011	0,01-0,006	0,005-0,001	0,002-0,001	0,001-0,0006	0,0005-0,0001	0,0002-0,0001	менее 0,0001	менее 0,00001	менее 0,000001	менее 0,0000001	менее 0,00000001			
V, мм. м. куб., объем разрушенного порока при разломе производств	более 51	50-26	25-11	10-6	5-3	2-0,06	0,05-0,006	0,005-0,003	0,002-0,001	0,001-0,0006	0,0005-0,0001	0,0002-0,0001	0,0001-0,00006	0,00005-0,00001	0,00002-0,00001	0,00001-0,000006	менее 0,00001	менее 0,000001	менее 0,0000001	менее 0,00000001	менее 0,000000001			
V, км/с (из лодки, диверсия) скорость смещения	более 16	15-6	5-3	2-1,6	1,5-1,3 (10-6 м/сут.)	1,2-1,1 (5-2 м/сут.)	1-0,3 (1-0,02 м/сут.)	0,2-0,03 (0,1-0,006 м/сут.)	0,02-0,011 (0,005-0,003 м/сут.)	0,01-0,006 (0,002-0,001 м/сут.)	0,005-0,001 (0,0005-0,0001 м/сут.)	0,002-0,001 (0,0002-0,0001 м/сут.)	0,001-0,0006 (0,0001-0,00006 м/сут.)	0,0005-0,0001 (0,00005-0,00001 м/сут.)	0,0002-0,0001 (0,00002-0,00001 м/сут.)	0,0001-0,00006 (0,00001-0,000006 м/сут.)	менее 0,00001	менее 0,000001	менее 0,0000001	менее 0,00000001	менее 0,000000001			
Ед. год. повторяемость	менее 0,001	0,001-0,006	0,005-0,011	0,01-0,25	0,26-0,55	0,56-0,75	0,76-0,95	0,96-1,0	1,1-1,3	1,31-1,5	1,51-2,0	2,01-3,0	3,01-5,0	5,01-10,0	10,01-20,0	20,01-50,0	50,01-100,0	100,01-200,0	200,01-500,0	500,01-1000,0	1000,01-2000,0	2000,01-5000,0		

Рис 12. ИГН универсальная 12- мерная шкала оценки и прогнозирования стихийных бедствий, катастроф и чрезвычайных ситуаций на планете Земля и ее субчастей.





Рис.15 Карта-схема сценария радиоактивной катастрофы для густонаселенной Ферганской долины исходящей от угрозы разрушения дамб радиоактивных хвостохранилищ Кыргызстана.



Рис.16. Карта-схема прогнозирования фаз активизации землетрясений до 2015 года территории в пределах наиболее сейсмоопасных зон Кыргызстана



Рис.17. Карта распределения разрушительных землетрясений на территории Кыргызстана и трансграничных районах со странами Центральной А



Рис.18. Карта оценки сейсмической опасности и прогноза землетрясений в Кыргызстане и трансграничных районах со странами Центральной Азии

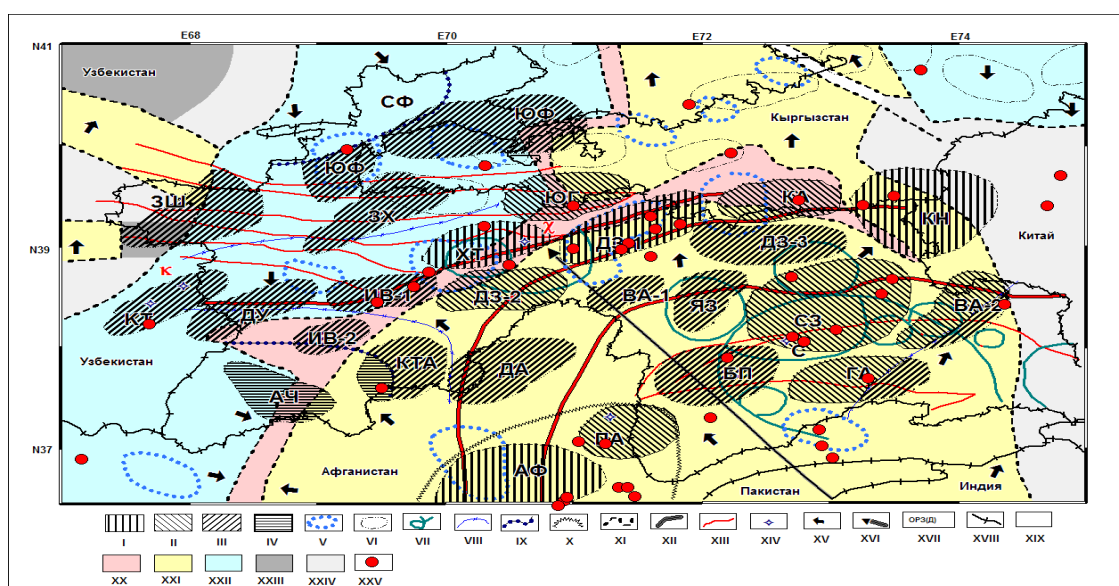


Рис. 19. Инженерно-геономическая карта-схема и модель долгосрочного прогноза ОРЗ (ореолов риска землетрясений) на территории Таджикистана и прилегающих районах с государствами Центральной Азии (Усупаев Ш.Э.-2009).

Позднее, указанная карта прогнозирования сейсмической опасности, от долгосрочного перерабатывалась с изменениями и, имеет для МЧС Кыргызстана среднесрочные варианты (на карте выделено 52-РОЗ). В отношении прогноза времени ожидаемых землетрясений, имеется обнадеживающая выявленная внутригодовая, по-месячная сезонность активизации сейсмических событий: 1.Весенний цикл (март-апрель), 2.Летний цикл (июль-август), 3.Зимний цикл (январь), 4.Осенний цикл (октябрь), что заметно усиливает позиции прогноза ожидаемого времени проявления сейсмокатастроф (1,2). Для каждой страны и/или сегмента Земли имеются собственные значения и смещения в цикличности месяцев активизации землетрясений.

На ИГН модели прогностического распределения многолетнее - помесечного распределения времени землетрясений различной интенсивности для территории Таджикистана подтверждается в определенных смещениях их максимальных пиков сезонность активизации землетрясений. Так, для Таджикистана в июле месяце активность землетрясений выше средних их показателей. На составленной ИГН карте-схеме и модели (Рис.5) долгосрочного прогноза ОРЗ (ореолов риска землетрясений) ля территории Таджикистана и приграничных районов со странами Центральной Азии, при проверке достоверности за период 18 прошедших лет точность подпадания эпицентров произошедших землетрясений с магнитудой более 5, составляет от 70 до 75 %.

В целях создания эффективной системы предупреждения времени землетрясений, целесообразно усилить потенциалы выше приведенных карт-схем прогнозирования сейсмического риска, на примере территорий Кыргызстана и Таджикистана, дополнением междисциплинарной сети мониторинга, позволяющей получить достаточно надежные кратко- и оперативные по срочности инструментального измерения предвестников ощутимых и сильных землетрясений, на основе размещения станций МГР 01 С, регистрирующих предвестниковые ритмы и аномалии многоканальными геофизическими регистраторами, естественных импульсов электромагнитного поля Зелим





Рис. 20 Карта-схема предлагаемого размещения над региональной сети мониторинга на основе установки МГР 01 С (многоканальных регистраторов естественных электро-магнитных импульсов) исходящих при вращении твердых ядер в недрах Земли.



Рис 21. МГР 01 С многоканальный геофизический регистратор для прогнозирования и раннего оповещения населения о предстоящих сейсмических катастрофах, цунами и возможных многоступенчатых чрезвычайных ситуаций, представляющих угрозу радиоактивным и ядерным объектам.

### **ВЫВОДЫ**

1. Разработанные основы ИГН методологии и модели, позволяют преобразовать различные тематические и поли-масштабные карты считающиеся до сир пор конечным продуктом исследований в новые прогностические для целей комплексной оценки рисков геомомы. ИГН-моделирование позволяет ускорить создание ОТЗ (Общей Теории Земли) и в прогностическом аспекте предупредить глобальные проблемы связанные с оценкой ожидаемого к 2050 году «экологического коллапса» и деградации биосферы. При этом прогностические данные предназначены для использования в целях планирования и развития энергетики с учетом со масштабных аспектов обеспечения их безопасности от чрезвычайных ситуаций природного, техногенного, экологического, социально-биологического и военного характера.

2. Имеющаяся мировая, региональная, национальная и локальные геобазы данных о распределении землетрясений, цунами, опасных ядерных и радиационных объектов позволяют составить предлагаемые ИГН карты и модели оценки рисков и прогнозирования возможных чрезвычайных ситуаций природного и техногенного характера. Планетарные, и в качестве ее субчастей различного ранга, Евразийские и более локальные ИГН (инженерно-геономические) модели распределения опасных изменений природной среды, квази-симметрически коррелируются с

характеристиками особенностей широтного размещения месторождений радиоактивных руд, а также расположения атомных и гидроэлектростанций на планете Земля. Одновременно, на разработанных ИГН моделях, приведены установленные закономерности по широтного распределения числа энергетических объектов (в том числе АЭС и ГЭС), расселения населения Земли и, крупных сейсмоопасных городов Мира.

3. Разработанные ИГН модели, а также 12 мерная унифицированная шкала оценки рисков, позволяют оптимизировать действия при планировании размещения АЭС и ГЭС на планете Земля и ее субчастях. Разработанные ИГН модели, и одноименные 12- мерные унифицированные шкалы оценки сейсмического риска и прогнозирования сейсмокатастроф, усиливают позиции и потенциал создания системы раннего оповещения населения от разрушительных землетрясений и цунами. А также возможном их воздействии на прилегающие районы размещения ядерных и радиоактивных объектов.

4. Составленные региональные карты оценки сейсмического риска и прогноза сейсмокатастроф, позволяют использовать их в целях принятия превентивных мер обеспечения защиты населения от угрозы ожидаемых сильных землетрясений на территориях Кыргызстана и Таджикистана. Составленные карты требуют доработки на основе создания сети прогноза землетрясений на основе многоканальных геофизических станций МГР 01 С. Аналогичные карты необходимо составить для сейсмоопасных стран как Центральной Азии так и, Тихоокеанского сейсмического пояса, включая Казахстан, Узбекистан, Туркмения, Армения, Японию и другие сейсмоопасные страны Мира.

5. Предлагается существенно модернизировать имеющиеся сети наблюдения за землетрясениями и цунами, а также районах размещения опасных ядерных и радиационных объектов многоканальными геофизическими регистраторами, позволяющими с помощью МГР 01 С создать систему раннего предупреждения и оповещения населения от ожидаемых сейсмокатастроф.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Усупаев Ш.Э. Инженерная геонимия - новый путь развития геологии и инженерной геологии, Материалы УШ межреспубликанской конференции молодых ученых, Издательство Илим, Фрунзе, 1986, с.143-147.
2. Усупаев Ш.Э. Инженерная геонимический анализ системы МЦТ и СТЦ, Тезисы трудов всесоюзного совещания «Кольцевые структуры и морфоструктуры - теоретические и прикладные аспекты», Владивосток, 1991, с.48.
3. Усупаев ВЗ.Э. Инженерная геонимия и Общая Теория Земли. Тезисы трудов всесоюзного совещания «Кольцевые структуры и морфоструктуры - теоретические и прикладные аспекты», Владивосток, 1991, с.48.
4. Усупаев Ш. Э. Инженерно-геонимическая модель планеты, Кыргызпатент, Свидетельство № 166, Бишкек, Кыргызстан, 1999 г.
5. Усупаев Ш.Э. Инженерно-геонимическая модель Кыргызской Республики (Кыргызского Тянь-Шаня), Кыргызпатент, Свидетельство № 165, Бишкек, Кыргызстан, 1999 г.
6. Усупаев ГПЭ. Инженерно-геонимическая модель прогнозирования землетрясений мира, Кыргызпатент, Свидетельство № 177 Бишкек, Кыргызстан, 2000 г.
7. Усупаев Ш.Э., Мамыров Э.М., и др. О сейсмомониторинге в Кыргызстане и на трансграничных территориях, Доклады 1-го Казахстанско-Японского семинара «Проблемы предотвращения последствий разрушительных землетрясений», Алматы, Эверо, 2002, с.67-75.
8. Акимов В.А., Новиков В.Д., Радаев Н.Н. Природные и техногенные чрезвычайные ситуации: опасности, угрозы, риски, М., ЗАО ФИД, «Деловой экспресс», 2002, 344 с.
9. Усупаев Ш.Э. Инженерно-геонимическая новейшая информационная методология прогнозирования месторождений полезных ископаемых на планете Земля и ее субчастях, Материалы международной конференции: Телекоммуникационные и информационные технологии. Состояние и проблемы развития», 6-11 июля 2001 г., Бишкек, , 2002, 374 с.
10. Ачкасов П.В., Усупаев Ш.Э. Гипотеза ударного преобразования планет солнечной системы на примере Земли. Материалы международной конференции «Подготовка к чрезвычайным ситуациям и реагирование на риски экологической безопасности в Центрально-Азиатском регионе» декабрь 18 – 19 ,2003, Бишкек 2004, с. 138 -145.
11. Усупаев Ш.Э. О новейших и современных геодинамических эндогенных движениях, как источниках естественного напряженного состояния грунтов на территории Кыргызстана. В трудах Международной научной конференции «Напряженное состояние природного массива и наведенная геодинамика недр», 14 -15 июня 2006, Бишкек-2006, С.130 -149.
12. Основы инженерной геонимии и катастрофоведения. (Коллектив авторов, под редакцией профессора, д.г-м.н. Усупаева Ш.Э.), (с грифом Министерства образования и науки Кыргызской Республики, в качестве учебного пособия для высших учебных заведений). Издательство «ДЭМИ», Бишкек, 2006г., 662с.
13. Усупаев Ш.Э., Молдобеков Б.Д., Абдыбачаев У. А., Шакиров А. Э. Абдрахманова Г.А., Федичкина И.Г. Инженерно-геонимическая оценка рисков экзо- и эндогенных опасных процессов и явлений на территории Кыргызской Республики. Материалы Международной геологической конференции «Изменяющаяся геологическая среда: пространственно-временные взаимодействия эндогенных и экзогенных процессов. Том.2 г. Казань 13 -16 ноября, 2007г.-Изд –во Казанск. Гос.ун –та, 2007.- с. 319-322.
14. Усупаев Ш.Э., Ачкасов П.В. Инженерно-геонимическое обоснование геохронологической шкалы (сравнительно-планетологические катастрофоведческие аспекты в связи с оценкой рисков бедствий.) Труды международной геологической конференции: Изменяющаяся геологическая среда: пространственно-временные взаимодействия эндогенных и экзогенных процессов. Казань, 2007 г. том II, с 241-244.
15. Малышков Ю.П., Малышков С.Ю. Периодические вариации геофизических полей и сейсмичности, их возможная связь с движением ядра Земли. Геология и геофизика, 2009, т.50, №2,

## ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЗМОВ ФОРМИРОВАНИЯ ПОВЕРХНОСТНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОЧВОГРУНТОВ И ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ В ЗОНЕ РЕКИ ШАГАН

Айдарханов А.О., Лукашенко С.Н., Субботин С.Б., Яковенко Ю.Ю.

*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Казахстан, г. Курчатов*

Река Шаган является единственным поверхностным водотоком в пределах бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП). Она течет вдоль восточной границы СИП и является левобережным притоком р. Иртыш. В результате ядерных испытаний на СИП, долина р. Шаган в той или иной степени подверглась радиоактивному загрязнению. При этом существует вероятность возможного переноса радионуклидов водами р. Шаган и радиоактивного загрязнения р. Иртыш. На формирование радионуклидного загрязнения долины р. Шаган могли повлиять следующие факторы: глобальные атмосферные выпадения, атмосферные выпадения от наземных ядерных взрывов на "Опытном поле", атмосферные выпадения и выброс загрязненной породы от экскавационного взрыва в скважине 1004, перенос радионуклидов ветром и поверхностными водами из зоны навала грунта вокруг "Атомного" озера, поступление загрязненных радионуклидами подземных вод из района "боевых" скважин. Для достижения поставленной цели было проведено измерение уровней содержания техногенных радионуклидов в донных отложениях, береговых грунтах и почвогрунтах долины р. Шаган. Оценка вклада в загрязнение почвогрунтов р. Шаган от атмосферных ядерных испытаний, проводилась определением концентрации радионуклидов на профилях, перпендикулярно пересекающих предполагаемые оси следов от взрывов, проведенных на площадке "Опытное поле".

Схема расположения точек отбора проб показана на рисунке (Рисунок 1).

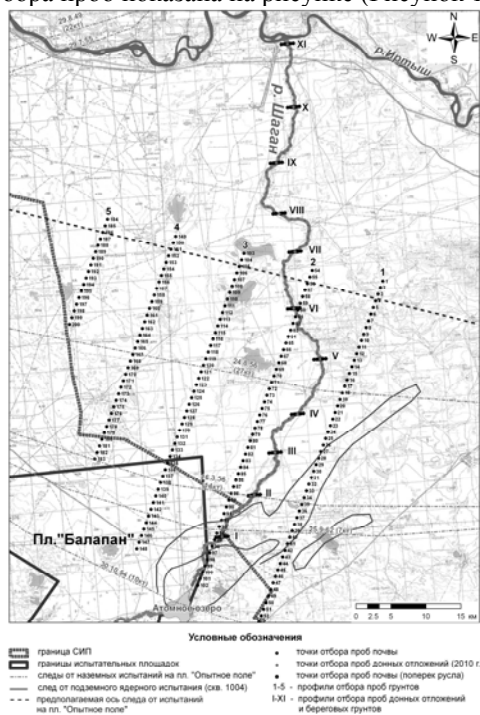


Рисунок 1. Схема отбора проб почвогрунтов и донных отложений

Анализ объектов донных отложений и почвогрунтов долины р. Шаган проводился в двух аналитических лабораториях НЯЦ РК: в лаборатории радиохимических исследований ИРБЭ НЯЦ РК и в лаборатории инженерной экологии ИЯФ НЯЦ РК.

Все измерения и анализы проб окружающей среды выполнялись согласно существующим ГОСТам, СТ РК, нормативным и методическим документам РК [5, 6, 7, 8, 9].

### Результаты работ

#### Характер загрязнения донных отложений

#### Распределение $^{241}\text{Am}$ , $^{60}\text{Co}$ , $^{152}\text{Eu}$ , $^{154}\text{Eu}$

Характер распределения техногенных радионуклидов в донных отложениях русла р. Шаган, представлен на рисунке (Рисунок 2).



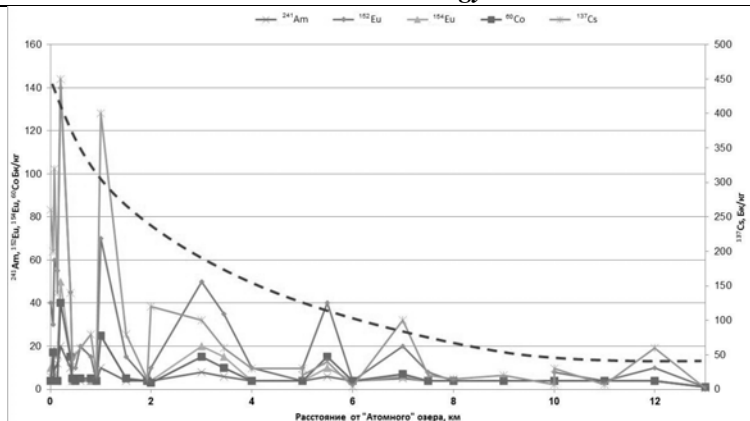


Рисунок 2. Характер распределения техногенных радионуклидов в донных отложениях

По результатам, представленным на рисунке (Рисунок 2), видно, что содержание всех техногенных радионуклидов максимально в месте выхода из плотины "Атомного" озера, что, несомненно, обусловлено экскавационным взрывом в скважине 1004. Спад активности  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ , близкой к фоновым значениям, происходит на отрезке длиной приблизительно 12 км от "Атомного" озера, на остальном участке русла до впадения в р. Иртыш отмечаются несколько точек, в которых были зафиксированы единичные значения, не превышающие 3 Бк/кг. При этом концентрация радионуклидов падает неравномерно, а в виде нескольких ярко выраженных пиков, максимальная концентрация в которых уменьшается в зависимости от расстояния до "Атомного" озера.

В таблице (Таблица 1) представлены сравнительные данные по средним соотношениям изотопов в грунтах гребня воронки и донных отложениях.

Таблица 1 Средние соотношения изотопов

Место отбора	$^{137}\text{Cs}$	:	$^{152}\text{Eu}$	:	$^{154}\text{Eu}$	:	$^{60}\text{Co}$	:	$^{241}\text{Am}$
Донные отложения	23,1±6,0	:	6,7±2,2	:	2,4±1,0	:	2,1±1,0	:	1
Гребень воронки	7,8±2,5	:	6,4±2,2	:	2,2±1,0	:	1,7±0,9	:	1
Профиль 2	24,9±6,5	:	3,8±1,1	:	2,6±1,1	:	1,4±0,8	:	1

Представленные на рисунке (Рисунок 2) и в таблице (Таблица 1) данные позволяют подтвердить предположение о том, что основное радиоактивное загрязнение донных отложений русла реки образовалось непосредственно в результате взрыва в скважине 1004 и к настоящему моменту является сформировавшимся, практически не изменяющимся со временем. Можно предположить, что основой выброс продуктов ядерного взрыва произошел именно в северо-восточном направлении, что подтверждается направлением оси следа от взрыва в скважине 1004, построенного по архивным материалам. Полученная картина распределения радионуклидов может являться базой при проведении оценки загрязнения почвогрунтов в других направлениях от "Атомного" озера.

По данным, изображенным на рисунке (Рисунок 2), можно сделать вывод о том, что загрязнение техногенными радионуклидами (продуктами активации), фиксируются на расстоянии до 12 км. Отличительной особенностью данного загрязнения является то, что общая картина распространения техногенных радионуклидов не носит характер повсеместного загрязнения с монотонно убывающей концентрацией. При общей картине спада активности по мере отдаления от гребня воронки "Атомного" озера можно выделить участки радиоактивного загрязнения 0,2 км; 1,2 км; 3 км; 5,5 км; 6,5 км; 12 км, между которыми присутствие техногенных радионуклидов не обнаружено.

В пользу предположения о 12-ти километровой зоне влияния взрыва в скважине 1004 говорят и результаты лабораторных исследований в пробах береговых грунтов. Количественные значения по техногенным радионуклидам  $^{241}\text{Am}$  и  $^{152}\text{Eu}$  получены только на I профиле, расположенном в 10 км от гребня воронки (Рисунок 3).

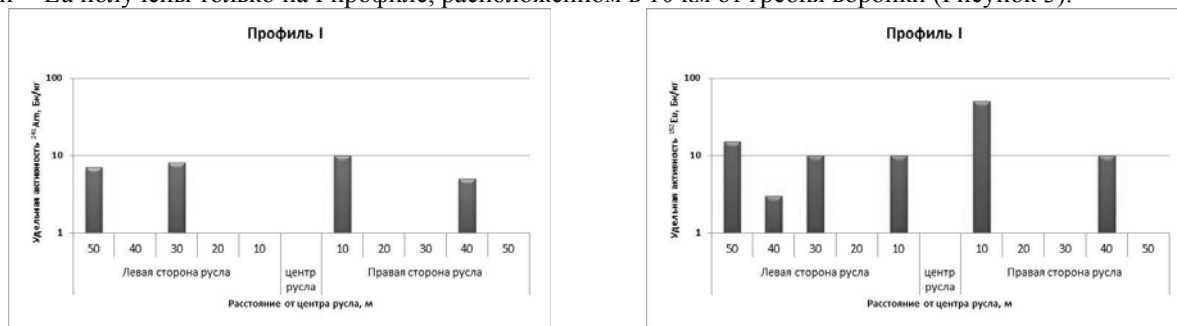


Рисунок 3. Распределение  $^{241}\text{Am}$  и  $^{152}\text{Eu}$  в береговых грунтах

### Распределение $^{137}\text{Cs}$

Иной характер изменения концентраций имеет  $^{137}\text{Cs}$ , присутствие которого отмечается на всем протяжении русла водотока (Рисунок 4). Соотношение  $^{137}\text{Cs}$  к  $^{241}\text{Am}$  в донных отложениях и на гребне воронки отличается почти в 3 раза. Отчетливо выделяются области повышенных концентраций  $^{137}\text{Cs}$  на 13-22, 43-46, 68-72км от "Атомного" озера, при этом на данных участках отсутствуют продукты активации. Возможным механизмом появления зон с

повышенными концентрациями  $^{137}\text{Cs}$ , являются атмосферные выпадения от испытаний на "Опытном поле". Для подтверждения высказанного предположения, на график распределения  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях были нанесены оси следов от ядерных испытаний, произведенных на площадке "Опытное поле".

Согласно данным, представленным на рисунке (Рисунок 4), можно сделать идентификацию и корректировку прохождения осей следов, определить их ширину.

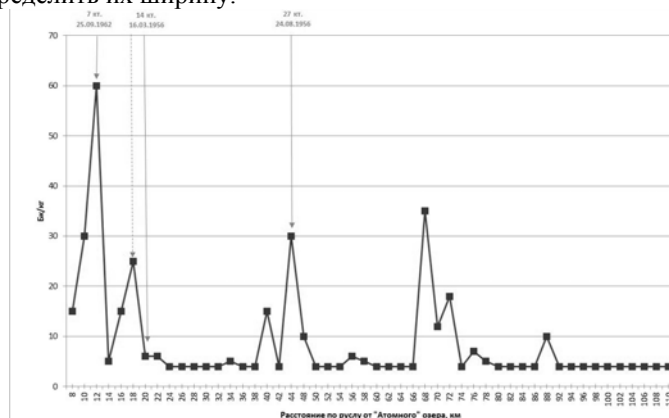


Рисунок 4. Характер распределения  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях

Результаты, представленные на графике (Рисунок 4) позволяют выделить некоторые особенности распределения  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях. Обращает на себя внимание полное отсутствие  $^{137}\text{Cs}$  ( $<3$  Бк/кг) на части русла, при том, что фон глобальных выпадений для  $^{137}\text{Cs}$  составляет 4 – 29 Бк/кг. Связано это, по всей видимости, с процессом заглупления данного радионуклида в грунт с инфильтрационным потоком. Полученные результаты, несмотря на хорошую корреляцию между осями следов и пиками распределения  $^{137}\text{Cs}$ , не позволяют сделать утверждение об их взаимосвязи. Так максимальная удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  в пике составляет 35 Бк/кг, что вполне сопоставимо с фоном глобальных выпадений. Пик с активностью  $^{137}\text{Cs}$ , равный 60 Бк/кг и расположенный на 12 км вполне может быть связан и с взрывом в скважине 1004.

Для подтверждения предположения о связи пиков  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях и следов от атмосферных ядерных испытаний были проанализированы абсолютные активности  $^{137}\text{Cs}$  в береговых грунтах и донных отложениях (Рисунок 5). С помощью этих данных была проведена оценка возможного содержания  $^{137}\text{Cs}$  в береговой линии реки. Для этого были рассчитаны отношения средних значений удельной активности  $^{137}\text{Cs}_{\text{ср}}$  в береговых грунтах по профилю к удельной активности  $^{137}\text{Cs}_0$  в донных отложениях на этом профиле.

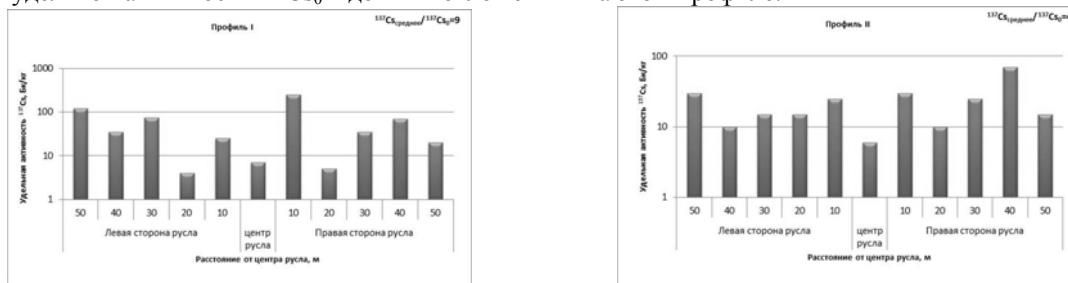


Рисунок 5. Характер распределения  $^{137}\text{Cs}$  в береговых грунтах

Полученные данные позволили оценить уровни загрязнения береговых грунтов  $^{137}\text{Cs}$ . Так отношение концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в береговых грунтах к концентрации  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях колеблется в диапазоне от 2 до 35. При этом среднее значение составляет 7. Таким образом, можно предположить, что концентрация  $^{137}\text{Cs}$  в береговых грунтах на пиковых участках может составить от 70 до 2100 Бк/кг, что значительно выше фона глобальных выпадений.

Таким образом, можно с уверенностью утверждать, что участки с повышенными концентрациями  $^{137}\text{Cs}$  в донных отложениях связаны с осями прохождения следов от испытаний на площадке "Опытное поле".

### Почвогрунты

Для изучения радиоактивного загрязнения почвогрунтов были проведены исследования по определению удельной активности техногенных радионуклидов в грунтах долины р. Шаган. Целью данных работ было определение характера и механизмов формирования радиационной обстановки исследуемой территории. Предполагалось, что, как и в случае с донными отложениями, на данной территории будут существовать, как минимум два источника загрязнения. Это экскавационный взрыв в скважине 1004 и глобальные выпадения от атмосферных ядерных испытаний.

Характер распределения  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  по профилям 3 и 4 показан на рисунках (Рисунок 6 – Рисунок 7). Ориентация профилей было принята с юга на север.

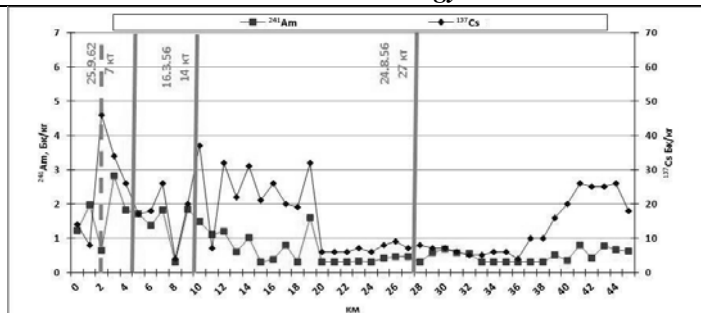


Рисунок 6. Характер распределения  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  по профилю 3

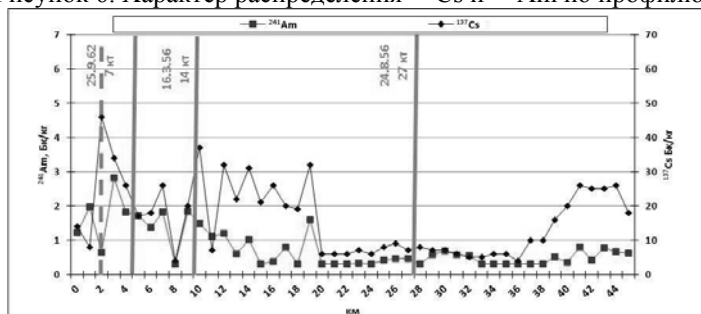


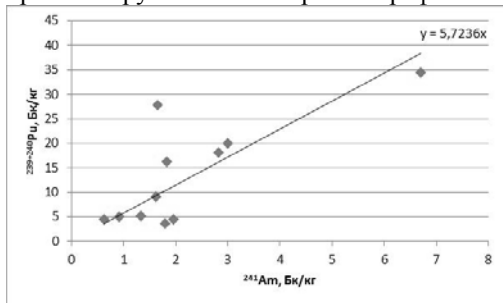
Рисунок 7. Характер распределения  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  по профилю 4

По результатам, представленным на рисунках (Рисунок 6 – Рисунок 7) видно, что удельная активность  $^{137}\text{Cs}$  находится в широком диапазоне значений от 1 до 500 Бк/кг, удельная активность  $^{241}\text{Am}$  изменяется от 1 до 48 Бк/кг. Пики указанных радионуклидов, практически везде, изменяются синхронно, что может говорить об одном источнике их происхождения. Наложением на графики следов от атмосферных ядерных испытаний можно объяснить происхождение пиков активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$ . В ряде случаев, с помощью полученных данных, стало возможным провести коррекцию прохождения осей этих следов. Результаты определения продуктов активации  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  показали, что количественные значения получены лишь в единичных пробах, отобранных в зоне влияния "Атомного" озера. Согласно полученным данным можно сделать выводы о том, что источником радиоактивного загрязнения продуктами активации является взрыв в скважине 1004. При этом полученные значения составили:  $^{152}\text{Eu}$  от 0,5 до 270 Бк/кг,  $^{154}\text{Eu}$  от 5 до 100 Бк/кг,  $^{60}\text{Co}$  до 90 Бк/кг.

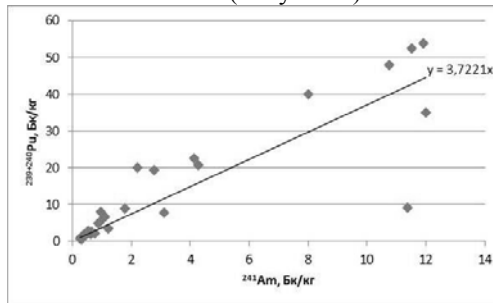
**Характер загрязнения изотопами плутония**

Учитывая значительную трудоемкость традиционного метода определения  $^{239+240}\text{Pu}$  (альфа-спектрометрия с предварительным радиохимическим выделением), в данном исследовании характера загрязнения территории изотопами плутония методологически был сделан упор на выявление корреляционной связи между  $^{241}\text{Am}$  и плутонием. Такой подход достаточно распространен и вполне оправдан, особенно в случае наличия одного источника загрязнения. Ситуация в районе "Атомного" озера несколько сложнее, так как загрязнение является смешанным (от нескольких источников).

Проанализировав данные о характере загрязнения территории техногенными радионуклидами, результаты лабораторных анализов по определению изотопов плутония, были разбиты на две группы. Первая группа включала в себя результаты лабораторных анализов проб отобранных в зоне влияния "Атомного" озера и вторая – все остальные. Для выбранных групп были построены графики отношений  $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  (Рисунок 8).



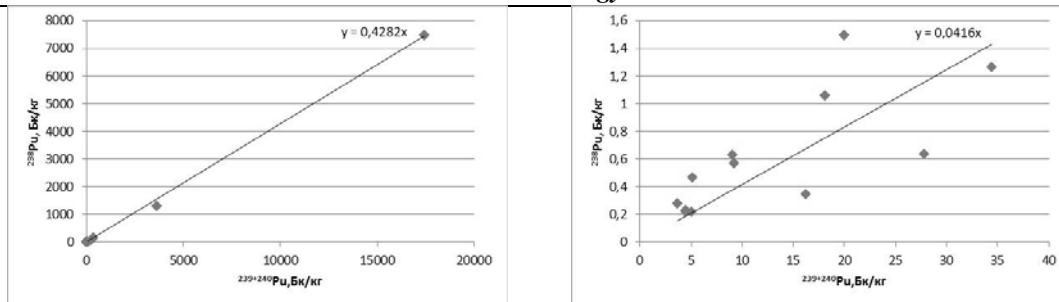
а) Зона влияния "Атомного" озера



б) Остальная территория

Рисунок 8. Соотношение  $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$  на различных участках

Таким образом, удалось получить два отношения  $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$ , что подтвердило версию о двух источниках загрязнения. Другим параметром, позволяющим идентифицировать источник происхождения техногенных радионуклидов, является соотношение  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ . Для одного и того же источника данное соотношение должно быть примерно одинаковым. Для указанных групп были построены точечные графики отношений  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  (Рисунок 9).



а) Зона влияния "Атомного" озера

б) Остальная территория

Рисунок 9. Соотношение изотопов плутония  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 

В результате для зоны влияния "Атомного" озера мы имеем отношение  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  равное 0,4, что подтверждается исследованием проб отобранных в эпицентральной части воронки, в которой указанное отношение равно 0,39. Для остальной территории отношение  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  будет равным 0,04, что примерно равно отношению, полученному при обследовании "северных" территорий СИП, где данное отношение составило 0,02-0,03.

### Выводы

Результаты проведенных исследований позволили провести оценку и определить механизмы радиоактивного загрязнения территории долины р. Шаган. Источниками загрязнения территории являются: глобальные выпадения, выпадения от испытаний на площадке "Опытное поле", экскавационный взрыв в скважине 1004.

Практически на всей территории обнаружено присутствие  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$  обусловленное глобальными выпадениями, на уровне до 30 Бк/кг. Основной вклад в загрязнение долины р. Шаган внесли выпадения от испытаний на площадке "Опытное" поле и экскавационный взрыв в скважине 1004, образовавшие две зоны радиоактивного загрязнения.

Первая зона является следствием ядерного испытания с выбросом грунта и имеет сравнительно небольшой радиус, порядка 10-12 км от гребня воронки "Атомного" озера, при этом максимальное загрязнение наблюдается в северо-восточном направлении, по предполагаемому следу прохождения облака взрыва. Для нее характерно повсеместное наличие продуктов активации  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ . Соотношение  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  на данной территории равно 0,4,  $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am} - 5,7$ .

Вторая зона, подверглась загрязнению вследствие выпадений от испытаний на площадке "Опытное поле". В основном, на данной территории присутствуют площадные загрязнения  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , которые пространственно приурочены к следам от наземных ядерных взрывов на "Опытном поле" и имеют ширину порядка 10 км. Отношение  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  для данного участка будет равным 0,04,  $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am} - 3,7$ .

Таким образом, в настоящее время на данной территории имеется вполне сформировавшаяся радиационная обстановка. В процессе работ установлено практическое отсутствие миграции техногенных радионуклидов с поверхностными водами, и опасения о возможном трансграничном переносе радионуклидов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$  с водами рек Шаган и Иртыш не подтверждаются.

*Авторы выражают благодарность сотрудникам лаборатории радиохимических исследований, лаборатории геоинформационных технологий Института радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, лаборатории инженерной экологии Института ядерной физики НЯЦ РК, оказавшим помощь в проведении данной работы и предоставившим отчетные и фактические материалы.*

УДК 577.4:504.75.05:615.849:539.16

## К ВОПРОСУ РЕКОНСТРУКЦИИ ДОЗ НАСЕЛЕНИЯ ПРОЖИВАЮЩЕГО В ЗОНЕ ВЛИЯНИЯ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ЯДЕРНОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

Лукашенко С.Н.<sup>1</sup>, Галич Б.В.<sup>1</sup>, Битенова М.М.<sup>1</sup>, Брянцева Н.В.<sup>1</sup>, Каширский В.В.<sup>1</sup>, Минкенова К.С.<sup>1</sup>, Мамырбаева А.Н.<sup>1</sup>, Каримбаева К.С.<sup>1</sup>, Мещерякова А.В.<sup>1</sup>,

Жадыранова А.А.<sup>1</sup>, Пивоваров С.П.<sup>2</sup>, Рухин А.Б.<sup>2</sup>, Чередниченко О.Г.<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатова

<sup>2</sup> Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы

<sup>3</sup> Институт общей генетики и цитологии, Алматы

Вопрос реконструкции доз приобретает особое значение для населения, проживающего в зоне влияния бывшего Семипалатинского ядерного испытательного полигона (СИП), в силу временной отдаленности от эпизодов облучения и отсутствия исчерпывающей информации о радиационной обстановке прошлых лет, вероятности дополнительного облучения вследствие медицинских процедур, хозяйственной деятельности на территориях, загрязненных радионуклидами. Поскольку с момента проведения ядерных испытаний прошло длительное время, в настоящий момент основную опасность представляет внутреннее облучение человека от продуктов питания и вдыхаемого воздуха.

При решении задач индивидуального контроля за внутренним содержанием радиоактивных веществ в представленном исследовании использовали: анализ биологических проб на содержание техногенных радионуклидов ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^3\text{H}$ ), измерение излучений тела человека с использованием счетчика излучений человека (СИЧ), определение частоты хромосомных aberrаций в культуре лимфоцитов, метод электронно-парамагнитного резонанса (ЭПР). Дозиметрические исследования проводились в условиях низкофоновой лаборатории.

Работы выполнены в Институте радиационной безопасности и экологии (ИРБЭ) НЯЦ РК совместно с Институтом общей генетики и цитологии (ИОГиЦ) г. Алматы и Институтом ядерной физики (ИЯФ) НЯЦ РК г. Алматы в период с мая по октябрь 2010 г.

Обследуемая когорта лиц была представлена, как лицами, непосредственно проживавшими в период формирования дозовых нагрузок на исследуемой территории, так и прибывшими в более позднее время. В основную группу вошли 44 человека, проживающие в селе Саржал с 1949 года по настоящее время. Группа сравнения составила 6 человек, прибывших или родившихся в Саржал после 1963 года. Основная часть обследованных занималась сельскохозяйственной деятельностью (рисунок 1), что повышало риск облучения за счет ингаляционного фактора. С целью оценки возможного влияния нерадиационных факторов в формирование биологических эффектов изучены дополнительные критерии, оказывающие влияние на генетический гомеостаз. Из числа обследованных курящие составили 18 человек, у 8 человек, в семейном анамнезе отмечены онкологические заболевания, у 11 патология беременности и врожденные аномалии развития.

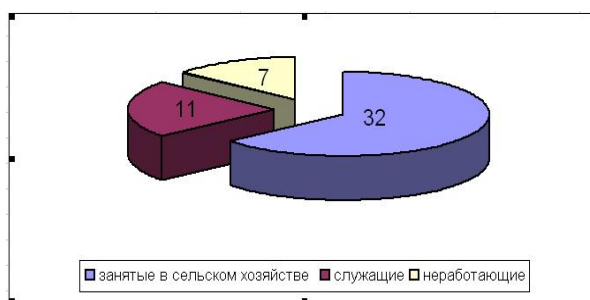


Рисунок 1. Распределение обследованных лиц по виду трудовой деятельности

#### Методы оценки доз

- По содержанию радионуклидов в организме человека:
  - косвенное определение радионуклидов в биосубстратах с использованием радиохимического выделения;
  - прямое определение радионуклидов на счетчике измерений человека (СИЧ).
- ЭПР дозиметрия эмали зубов (внешняя поглощенная доза).
- Исследование хромосомных aberrаций (биодозиметрия).

#### Расчёт доз по результатам исследования радионуклидов в моче

Согласно методическим подходам, рекомендованным МАГАТЭ и МКРЗ, проведена оценка поступления  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и ожидаемые дозовые нагрузки.

Так как в проведенном исследовании радионуклиды не обнаружены, для расчетов ожидаемых доз были взяты пределы достигнутых уровней активности исследуемых радионуклидов.

Учитывая, что целью работы была оценка возможности используемых методов, для реконструкции ожидаемых годовых накопленных доз от искусственных радионуклидов, для расчетов были взяты минимальные значения достигнутых уровней активности исследуемых радионуклидов.

Расчёт ожидаемой эффективной дозы внутреннего облучения производился для перорального и ингаляционного пути поступления  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  в организм.

При расчёте эффективной дозы внутреннего облучения от ингаляционного пути поступления  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  были учтены размеры частиц, т.е. САДА (средний аэродинамический диаметр активности) равный 1 мкм.

При расчёте эффективной дозы внутреннего облучения от перорального пути поступления  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  были учтены коэффициенты поглощения кишечником.

Так как тип поступающих соединений  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  неизвестен, расчёт был произведён для всех видов химических форм F, M и S данных радионуклидов.

В таблице 1. представлены результаты оценки доз внутреннего облучения по результатам исследования радионуклидов в моче.

Таблица 1. Результаты оценки доз внутреннего облучения по результатам исследования радионуклидов в моче

	$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$	$^3\text{H}^*$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$
Предел обнаружения (активность) $A_{\min}$ в моче, Бк	$3,0 \times 10^{-3}$	$6,0 \times 10^{-3}$	12,4	$9,5 \times 10^{-2}$	$1,0 \times 10^{-3}$
Доза облучения мЗв за год при концентрации равной пределу обнаружения $A_{\min}$ , мЗв	4,4	$4,2 \times 10^{-5}$	$2,6 \times 10^{-4}$	1,5	4,6

### Radiation Ecology

Концентрация (активность) А соответствующая 1 мЗв	$7,0 \times 10^{-4}$	$1,5 \times 10^2$	$5,0 \times 10^4$	$7,0 \times 10^{-2}$	$2,1 \times 10^{-5}$
---	----------------------	-------------------	-------------------	----------------------	----------------------

Полученные уровни ожидаемых доз внутреннего облучения от  $^{137}\text{Cs}$  и  $^3\text{H}$  при концентрации равной пределу обнаружения значительно ниже установленного предела в 1 мЗв.

В исследованиях по содержанию  $^{90}\text{Sr}$ , ожидаемые дозы при концентрации равной пределу обнаружения, оказались несколько выше 1 мЗв.

Достигнутый предел обнаружения для  $^{241}\text{Am}$ , и  $^{239+240}\text{Pu}$ , оказался на порядки выше уровня концентрации соответствующей 1 мЗв ожидаемой дозы для данных радионуклидов.

Превышение пределов доз внутреннего облучения от  $^{241}\text{Am}$ , и  $^{239+240}\text{Pu}$  1 мЗв связано с высоким значением предела обнаружения.

Таким образом, используемый метод радиохимического выделения может быть использован для оценки накопленных доз населения от  $^{137}\text{Cs}$  и  $^3\text{H}$ .

Для более точной оценки содержания  $^{90}\text{Sr}$  в моче требуется увеличение объема отбираемой пробы мочи и времени экспозиции.

Использование данного метода для обнаружения  $^{241}\text{Am}$ , и  $^{239+240}\text{Pu}$ , не позволяет достигнуть минимального предела обнаружения соответствующего ожидаемой дозе в 1 мЗв.

#### **Расчет накопленной дозы с использованием результатов прямого определения искусственных радионуклидов в теле человека**

Исследование концентраций  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  в теле обследуемых с использованием счетчика излучения человека свидетельствуют, что показатели удельной активности  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  в теле обследованных лиц, находятся ниже предела обнаружения.

**Таблица 2.** Результаты оценки доз внутреннего облучения по результатам исследования радионуклидов в теле человека с использованием СИЧ

	$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$
Предел обнаружения (активность) $A_{\min}$ в моче, Бк	$3,2 \times 10^1$	9,0
Доза облучения мЗв за год при концентрации равной пределу обнаружения $A_{\min}$ , мЗв	12,0	$1,8 \times 10^{-4}$
$A_{\min}$ соответствующая 1 мЗв	2,7	$3,3 \times 10^4$

Расчет ожидаемых дозовых нагрузок на основе нижнего предела обнаружения по данным радионуклидам свидетельствует о том, что достигнутых пределов обнаружения удельной активности для  $^{137}\text{Cs}$  достаточно для адекватной оценки накопленной дозы.

Полученные в исследовании результаты ожидаемых доз от  $^{241}\text{Am}$  имеют высокие значения, что связано с высоким значением предела обнаружения. Для более точной оценки содержания  $^{241}\text{Am}$  в организме человека требуется увеличение времени экспозиции, изменения аппаратурной базы, улучшения фоновых характеристик защитной камеры.

#### **ЭПР дозиметрия эмали зубов (внешняя поглщенная доза).**

Исследование эмали зубов методом ЭПР показало, что распределение величины дозовых нагрузок является не стандартным логнормальным, а имеет явно выраженный бимодальный вид, что дает основание для выдвижения гипотезы о целесообразности выделения субпопуляций, одна из которых могла получить дополнительную дозу при несанкционированных посещениях загрязненных территорий полигона с высоким радиационным фоном. (Рисунок 2.)

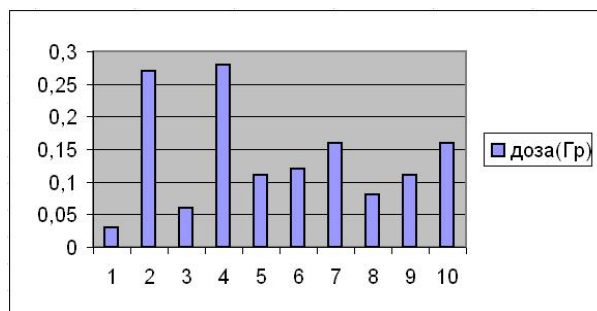


Рисунок 2. Результаты реконструкции дозовых нагрузок жителей с. Саржал методом ЭПР-дозиметрии

#### **Исследование хромосомных aberrаций (биодозиметрия).**

Результаты биодозиметрии, основанные на исследовании частоты хромосомных нарушений у жителей п. Саржал свидетельствуют о том, что частота обнаружения хромосомных aberrаций почти в 3,5 раза выше, чем в контроле (Рисунок 3.)

Был проведен анализ распределения частот aberrаций хромосомного типа в зависимости от времени проживания на радиационно-загрязненной территории (Рисунок 4).

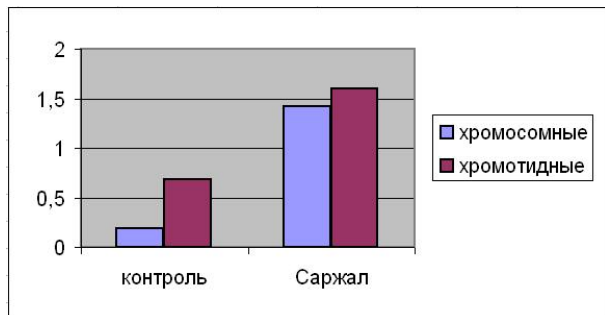


Рисунок 3. Распределение по типам хромосомных aberrаций

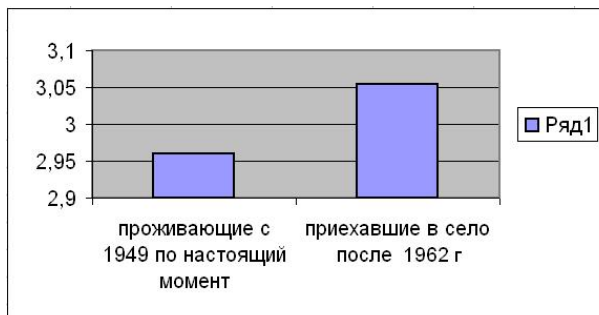


Рисунок 4. Зависимость частоты хромосомных aberrаций от продолжительности проживания в п. Саржал

Как видно на представленной диаграмме, достоверных различий между сравниваемыми показателями нет.

Лица, предположительно подвергавшиеся более продолжительное время воздействию радиационных генотоксикантов, не демонстрируют повышенный уровень цитогенетических нарушений, напротив он даже несколько снижен.

Высокая вариабельность частоты хромосомных aberrаций – от 0 до 9,5% у людей и отсутствие связи с эпидемиологическими данными свидетельствует о гетерогенности популяции по критерию радиочувствительности.

Представленные результаты также свидетельствуют о неправомерности оценки риска малых доз облучения путем линейной экстраполяции с эффектов высоких доз, поскольку биологический ответ на действие ионизирующей радиации меняется с дозой вследствие индукции процессов репарации, "запуск" которых происходит после некоторого порога повреждения клеток.

У разных лиц из исследуемой когорты частота хромосомных aberrаций варьировала в значительных пределах – от 0 до 13%, при этом, более 45% обследованных людей имели 3 и более процента клеток с цитогенетическими нарушениями.

В спектре хромосомных aberrаций встречались aberrации как хромосомного – 1,39±0,32%, так и хроматидного типов – 1,89±0,36%. Хромосомные aberrации представлены двойными разрывами и фрагментами, дицентриками и транслокациями. Хроматидные aberrации – одиночными разрывами, фрагментами и межхроматидными обменами.

Как известно, маркерами радиационных повреждений являются aberrации хромосомного типа, а химическими – хроматидного типа. В связи с этим, при не столь радикальном увеличении частоты aberrации хроматидного типа (в 2,8 раза), наблюдается более чем 7-ми кратное превышение aberrации хромосомного типа.

Учитывая, что дицентрики+транслокации в одних формулах не присутствуют, так как дицентрики и кольца относятся к нестабильным aberrациям, а транслокации к стабильным. Нами была предпринята попытка оценки доза-эффект при рутинном анализе исходя из количества нестабильных aberrаций – дицентриков и колец. Данные показатели выявлены лишь у 6 обследованных лиц. Исходя из этого, ориентировочное значение накопленной дозы облучения можно определить для этой группы лиц. Ниже представлен расчет доз с использованием принятых методик расчета:

По изначальной формуле Ллойда:  $D=y/0,022$   
 $D$  – доза поглощенная (эквивалентная) (Зв)  
 $y$  – частота дицентриков  
 0,022 – стандартный коэффициент

Поскольку, у всех индивидуумов выявленная частота дицентриков+кольца одинаковая, то расчет и значение у всех одни и те же.

$$D=0,01/0,022=0,45 \text{ Зв}$$

2) Если вычислять по формуле рекомендованной МАГАТЭ для фракционированного облучения:  $Y=\alpha D+\beta D^2$ , то получается **0,23 Зв**

$D$  – доза поглощенная (эквивалентная) (Зв)  
 $y$  – частота дицентриков  
 $\alpha$  – 0,03 (коэффициент)  
 $\beta$  – 0,06 (коэффициент)

Если использовать калибровочную кривую доза-эффект, получается примерно такое же значение - **0,22-0,25Зв.**

Таким образом:

- В результате проведенного исследования в организме обследованных жителей с.Саржал искусственные радионуклиды:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^3\text{H}$  не выявлены.
- Достигнутые в данном исследовании пределы чувствительности аппаратуры для определения содержания радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^3\text{H}$  являются достаточными для оценки накопленных доз для населения.



- Для оценки накопленной дозы по радионуклидам  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  требуется повысить чувствительность методики определения.
- Оценка накопленной дозы внешнего облучения методом ЭПР эмали зубов свидетельствует о неоднородности популяции жителей села Саржал и вероятности дополнительного облучения от иных источников, несвязанных с техногенным загрязнением территории села.
- Оценка накопленных эффективных доз внутреннего облучения населения села Саржал методом исследования числа хромосомных aberrаций не выявило закономерности между уровнем хромосомных aberrаций и продолжительностью проживания на радиоактивно загрязненной территории.

## КАРТОГРАФИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ

Ю.А. Израэль, В.В. Снакин, Д.А. Манзон

*Институт глобального климата и экологии Росгидромета и РАН, г. Москва, Россия*

Исследование структуры и трансформации полей радиоактивного загрязнения современных ландшафтов превратилось в наше время в актуальную научную проблему. Современные ландшафты сформировались в результате антропогенного влияния на естественные геосистемы. В наше время практически повсюду естественные ландшафты изменены человеком в той или иной степени в процессе хозяйственной деятельности. Поэтому, рассматривая вопрос о загрязнении современных ландшафтов, мы одновременно исследуем и важнейший экологический вопрос загрязнения земельных угодий. Информация об их радиоэкологическом состоянии позволяет разрабатывать особые структуры землепользования, приводящие, в отличие от традиционных, к уменьшению дозовых нагрузок на население.

Человечество не гарантировано от аварий и ядерных инцидентов, которые могут приводить к радиационному загрязнению. Для оценки масштаба загрязнения необходимо знать фон, предшествующий возможному загрязнению. Таким образом, прогноз фона загрязнения должен осуществляться особенно тщательно в отсутствие новых инцидентов. Формирование полей загрязнения, как на этапе выпадения радионуклидов, так и в процессе их вторичного перераспределения, происходит в ландшафте под воздействием природных и антропогенных факторов.

Во время инцидентов в первую очередь страдает атмосфера, объекты гидросферы, почва и произрастающая на ней растительность, антропогенные объекты. При этом почва является главным компонентом ландшафта, где аккумулируются и перераспределяются искусственные радионуклиды.

Для оценок ущерба нужен анализ сложившейся обстановки после очередной аварии на довольно больших территориях, для чего лучшим решением является создание карт этих территорий.

Картографирование радиоактивного загрязнения – новое направление как в исследованиях радиоактивности в окружающей среде, так и в экологической картографии.

Как правило, производятся наземные обследования территорий, которые дают информацию для картирования. Картирование является на практике одним из самых перспективных методов для оценки ретроспективы, современного состояния и прогноза на территориях, подвергшихся радиоактивному загрязнению.

Особое внимание к картированию радиационного загрязнения местности возникло после аварии на ЧАЭС. Прежде всего следует отметить «Атлас загрязнения Европы цезием после Чернобыльской аварии», изданный Бюро по официальным изданиям Европейской Комиссии в 1998 году под научным руководством Ю.А. Израэля и с помощью специалистов ИГКЭ. В создании атласа принимали участие большинство европейских стран. (Рис.1 )

В том же 1998 году сотрудниками ИГКЭ под научным руководством Ю.А. Израэля был создан «Атлас радиоактивного загрязнения Европейской части России, Белоруссии и Украины», где подробно были рассмотрены территории, наиболее пострадавшие в результате аварии на чернобыльской АЭС.

В 2007 году по Поручению Правительства Российской Федерации был создан Национальный Атлас России (НАР), содержащий карты и текстовый материал, отражающий общую характеристику природных условий и природных ресурсов России, а также карты, дающие представление о территориальных особенностях распределения природных параметров. Том № 2 этого атласа, подраздел «Радиоактивное загрязнение» включает в себя следующие карты и материалы:

1. История формирования поля радиоактивного загрязнения:  
Карты масштаба 1:60.000.000 загрязнения территории России цезием-137 в результате атмосферных ядерных испытаний (по состоянию на начало 70-х годов XX века и на начало 80-х годов (канун аварии на Чернобыльской АЭС)); схемы следов загрязнения местности цезием-137 в результате подземных ядерных испытаний на Южном острове Новой Земли.
2. Авария на Чернобыльской АЭС:  
Карта загрязнения территории Российской Федерации 1:30.000.000
3. Загрязнение  $^{137}\text{Cs}$  территории России:  
Врезка, где представлена детализация ситуации для Европейской части России в масштабе 1:10.000.000. Схемы метеорологических траекторий перемещения загрязненных воздушных масс в первые дни после аварии на ЧАЭС.
4. Загрязнение в результате аварий и деятельности предприятий ядерного топливного цикла:

Описание результатов воздействия на природу трех важнейших предприятий ядерного топливного цикла России: ПО «Маяк» на Южном Урале, Сибирского Химического комбината в Томске и Красноярского Горно-Химического комбината. Информация по ПО «Маяк» включает 2 карты регионального загрязнения местности  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Информация по аварии в Томске включает схему послеварийного следа (в уровнях мощности дозы гамма-излучения). Информация по последствиям деятельности Красноярского ГХК включает схему загрязнения вдоль долины р.Енисей.

5. Прогноз радиоактивного загрязнения включает карту загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  по состоянию на 2016 год в предположении отсутствия каких-либо существенных ядерных событий в мире.

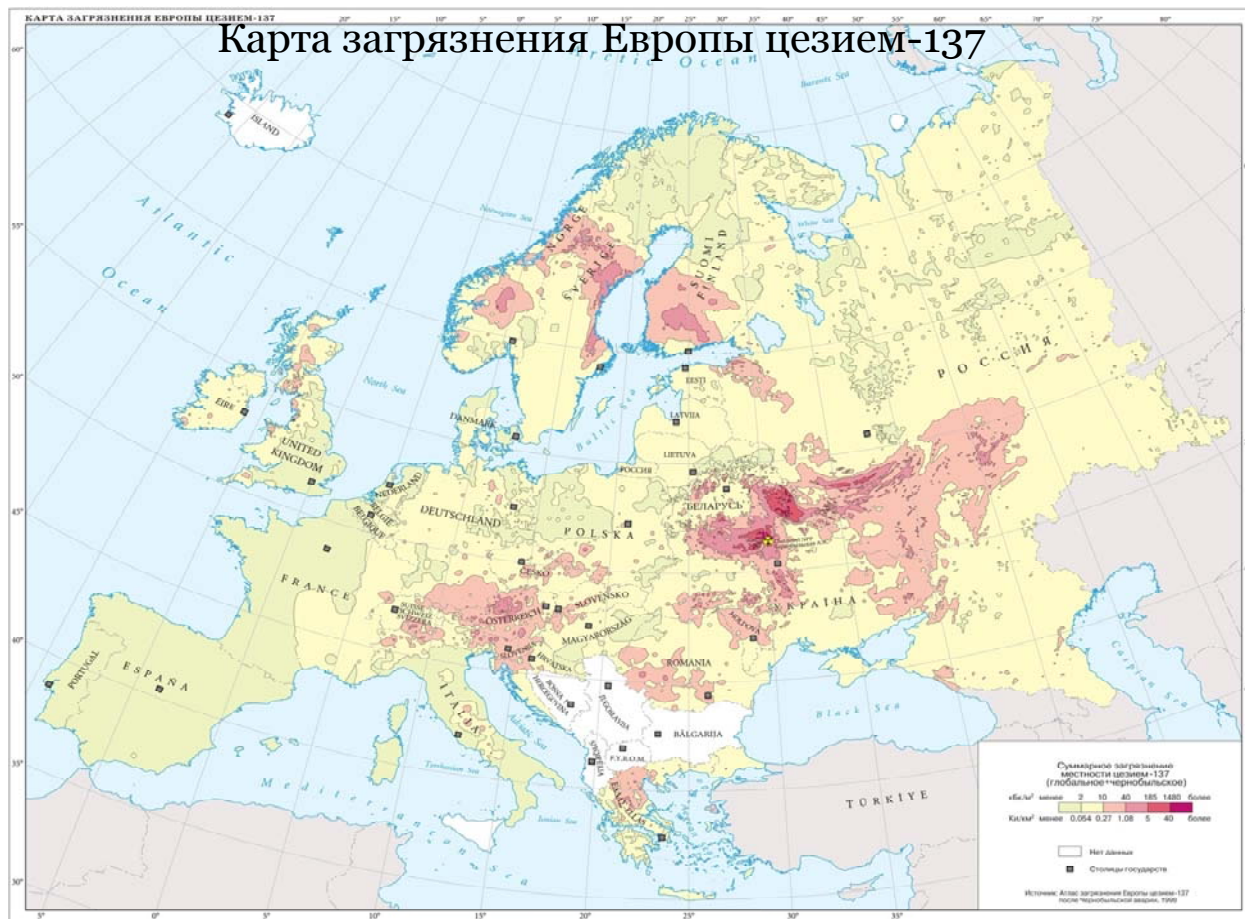


Рис.1. Загрязнение Европы цезием-137.

В 2009 г. как официальное издание при выполнении «Программы совместной деятельности по преодолению последствий чернобыльской катастрофы в рамках Союзного государства на 2006–2010 гг.», специалистами союзного государства Россия – Беларусь был издан Атлас современных и прогнозных аспектов последствий аварии на чернобыльской АЭС на пострадавших территориях России и Беларуси (АСПА Россия - Беларусь).

В проектировании, разработке и создании этого атласа участвовали 19 организаций и учреждений от России и Беларуси. Это особый вид картографического произведения, где объектом картографирования выступает загрязненная в результате аварии на Чернобыльской АЭС территория, входящая в состав Союзного государства.

Атлас имеет структуру в виде четырех разделов: Обзорный, Динамика радиоактивного загрязнения территории России и Беларуси, Радиоактивное загрязнение различных ландшафтов и Справочные сведения.

В Обзорном разделе достаточно подробно описана авария на Чернобыльской АЭС и история формирования поля радиоактивного загрязнения в пределах России и Белоруссии. Обзорная карта Европейского континента и среднемасштабные карты района Чернобыльской аварии (на январь 1993 г.) наглядно отображают эколого-радиационную обстановку, позволяющую оценить последствия этой аварии. Включение в раздел материала, характеризующего метеорологические условия и направления распространения радиоактивного загрязнения, чрезвычайно важно, поскольку помогает понять закономерности распространения аварийного выброса в связи с метеорологическими условиями.

Второй раздел – основной, включает более 50 карт, выполненных в едином масштабе (1:1 000 000), которые передают плотность загрязнения областей РФ и Белоруссии цезием-137 и обзорные мелкомасштабные карты загрязнения территории Белоруссии стронцием-90.

Карты главного раздела атласа, согласно опыту наилучшей читаемости материала, составлены в масштабе 1:2.500.000. Раздел включает наиболее загрязненные административные области:

5 областей Республики Беларусь: Гомельскую, Могилевскую, Минскую, Гродненскую и Брестскую и 4 области России: Брянскую, Калужскую, Тульскую и Орловскую.

Для каждой области составлены карты по 8 временным срезам:

Ретроспективные карты 1986 и 1996 гг.: открывающие проблему радиоактивного загрязнения в результате аварии в Чернобыле и подчеркивающие преемственность современной карты и карт прогнозных.

Современная карта 2006 г.: (откорректированная по дополненной базе данных), на основе которой строятся прогнозные карты.(Рис.2).

Прогнозные карты 2016, 2026, 2036, 2046, 2056 гг.: к 2056 году включающие среднюю продолжительность жизни человека (70 лет), родившегося в 1986 г. Карты иллюстрируют снижение уровней загрязнения и сокращение площадей опасных зон загрязнения.

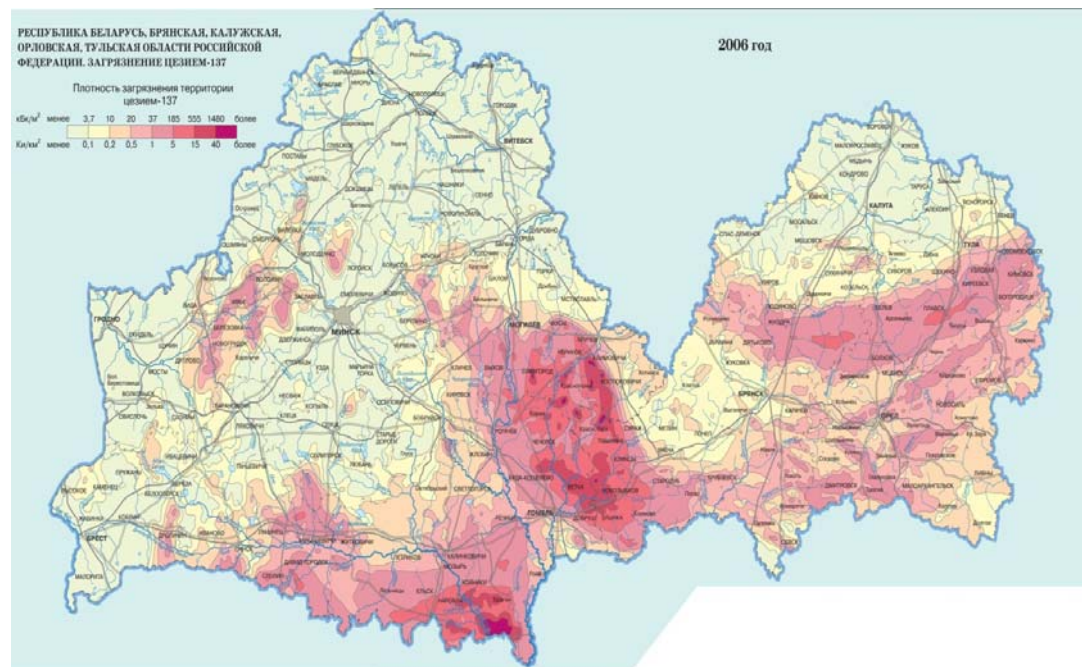


Рис.2. Республика Беларусь, Брянская, Калужская, Орловская, Тульская области Российской Федерации. Загрязнение цезием-137. 2006г.

Третий раздел дает возможность ознакомиться с последствиями радиоактивного загрязнения по основным категориям земель (сельскохозяйственным, лесным) и водным объектам. Раздел содержит разностороннюю информацию, характеризующую радиационную обстановку в пределах сельскохозяйственных земель и лесов, накопление и миграцию радиоактивных элементов, а также защитные мероприятия, реализованные и реализуемые по ходу оздоровления природной окружающей среды.

Заключительный справочный раздел содержит всю необходимую информацию, связанную с последствиями Чернобыльской аварии и их преодолением в медико- демографическом и социально-экономическом аспектах посредством целого ряда мер и специальных программ, направленных на нормализацию меняющейся со временем ситуации.

В соответствии с Федеральной целевой программой «Преодоление последствий радиационных аварий на период до 2010 года» специалистами ИГКЭ выполнены работы по созданию карты радиоактивного загрязнения стронцием-90 площади Восточно-Уральского радиоактивного следа (ВУРСа) в масштабе 1:50 000.

В рамках Федеральной целевой программы «Преодоление последствий радиационных аварий на период с 2011 по 2015гг.» началась разработка атласа ВУРСа.

Практическое значение карт радиоактивного загрязнения очевидно: это прежде всего предоставление управляющим звеньям экономики и администрациям информации о состоянии подвластных территорий. Они используются для территориального планирования экономических, сельскохозяйственных, жилищных, рекреационных структур, кроме того, они служат для оценок ущербов здоровью населения и народному хозяйству, оценок рисков, и служит выработке территориальных стратегий природопользования.

В настоящее время роль карт радиоактивного загрязнения имеет важное социальное и образовательное значение. Антропогенная радиоактивность уже полвека включена в жизнь человека, стала неотъемлемой частью среды его обитания.

Опыт создания этих атласов показал их необходимость. Сразу же после издания такие атласы стали раритетными материалами, они имеют государственное и межгосударственное значение.

#### Литература

1. Атлас загрязнения Европы цезием после Чернобыльской аварии. Люксембург, Бюро по официальным изданиям Европейской Комиссии, ISBN 92-828-3140-X; номер каталога CG-NA-16-733-29-C, 1998, 108 с. Науч.рук.Ю.А.Израэль. Авторы: Де Корт М., Дюбуа Г., Фридман Ш.Д., Герменчук М.Г., Израэль Ю.А., Янссенс А., Джонес А., Келли Н.Г., Квасникова Е.В. и др. Редакторская группа: Де Корт М., Фридман Ш.Д., Израэль Ю.А., Джонес А., Келли Н.Г., Квасникова Е.В. и др. Сбор, интеграция и оценка радиологических данных: Де Корт М., Дюбуа Г., Фридман Ш.Д., Имшенник Е.В., Квасникова Е.В. и др.

2. Атлас радиоактивного загрязнения Европейской части России, Белоруссии и Украины. 1998, 143 с. Науч.рук. Ю.А.Израэль. Научные редакторы: Квасникова Е.В., Назаров И.М., Стукин Е.Д., Фридман Ш.Д. Авторы: Вакуловский С.М., Израэль Ю.А., Имшенник Е.В., Квасникова Е.В., Контарович Р.С., Назаров И.М., Никифоров М.В., Стукин Е.Д., Фридман Ш.Д.
3. Атлас современных и прогнозных аспектов последствий аварии на чернобыльской АЭС на пострадавших территориях России и Беларуси (АСПА Россия-Беларусь). / Под ред. Ю.А. Израэля и И.М. Богдевича. Москва-Минск: Фонд «Инфосфера» - НИА-ПРИРОДА, 2009.
4. Израэль Ю.А. Радиоактивные выпадения после ядерных взрывов и аварий. - Спб: Прогресс-Погода, 1996, 355 с.
5. Израэль Ю.А., Квасникова Е.В., Назаров И.М., Стукин Е.Д. Радиационный мониторинг. Состояние и комплексный мониторинг природной среды и климата. Пределы изменений. Под ред. Ю.А.Израэля, М: Наука, 2001, с.93-155.
6. Карта радиационной обстановки на территории европейской части СНГ и государств Балтии по состоянию на январь 1993 г. М: 1:2 500 000. Минск: Белкартография, ИГКЭ, 1993. Отв.редактор Ю.А.Израэль. Редакционно-авторский коллектив: по России – Фридман Ш.Д., Назаров И.М., Квасникова Е.В., Имшенник Е.В., Цатуров Ю.С., Челюканов В.В., Стукин Е.Д., Контарович Р.С. и др.
7. Карта радиационной обстановки на территории Европейской части СССР по состоянию на декабрь 1990 года. 1:500 000. ГУГК СССР, 1991 г. 38 топ.листов. Отв.редактор Ю.А.Израэль. Редакционно-организационный совет: Авдюшин С.И., Вакуловский С.М., Гасилина Н.К., Квасникова Е.В., Контарович Р.С., Назаров И.М., Никифоров М.В., Стукин Е.Д., Фридман Ш.Д., Цатуров Ю.С. Редакционно-составительская группа: Бобовникова Ц.И., Имшенник Е.В., Квасникова Е.В., Фридман Ш.Д.

## **О МАТЕРИАЛАХ ДЛЯ СПЕЦИАЛЬНОЙ РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНОЙ ОДЕЖДЫ ПОЖАРНЫХ НА АЭС И ДРУГИХ РАДИАЦИОННО-ОПАСНЫХ ОБЪЕКТАХ**

Бенецкий Б.А., Лифанов М.Н.

*Учреждение Российской академии наук Институт ядерных исследований РАН, Москва*

*E-mail: benetsky@yandex.ru, lifanov@sci.lebedev.ru*

События на АЭС Фукусима-1, произошедшие в результате землетрясения в Японии 11 марта 2011 г., вновь подтвердила актуальность проблемы обеспечения радиационной безопасности персонала, занятого ликвидацией аварии на ядерном объекте.

Разработка композиционных текстильных материалов и одежды, имеющих радиационно-защитные свойства и предотвращающие сочетанные поражения, началась совместно в Научно-исследовательском институте текстильно-галантерейной промышленности Минлегпрома СССР (НИИТГП) и Институте ядерных исследований Академии наук СССР (ныне ИЯИ РАН) в 1982 г., ещё до аварии в Чернобыле. В итоге совместная работа ВНИИ противопожарной обороны, ИЯИ РАН, НИИ текстильных материалов, ЦКБ Правительственного медицинского центра РФ реализована в виде специальной радиационно-защитной одежды типа СЗО-1, которая впервые в мире поступила в эксплуатацию в подразделение ГПС МЧС России в 1994 году. Современная модель спецодежды пожарных "РЗК" [5], разработанная в ОАО "Пожтехсервис" совместно с ИЯИ РАН, ВНИИПО и ВНИИ эластомерных материалов и изделий, выпускается в Москве, она введена в нормы снабжения сотрудников МЧС Решением Правительства РФ № 789 от 22 декабря 2006 г. и регламентирована Национальным стандартом РФ ГОСТ Р 53264 – 2009 и Нормами пожарной безопасности НРБ 162 – 2002. Параметры защиты и методика измерений включены в НПБ 162-2002. Такая свинецсодержащая аварийная одежда защищает от субтотального радиационного бета-ожога, радиоактивного загрязнения поверхности тела и проникновения радиоактивной пыли, аэрозолей и газов в дыхательные пути и пищеварительный тракт, а также понижает уровень поражения внутренних органов внешним гамма излучением. Защищает от высоких температур и агрессивных сред. В ситуации близкой к чернобыльской при неконтролируемом повышенном облучении она способна понизить степень потенциальной острой лучевой болезни на единицу (кроме крайне тяжелых поражений IV степени).

Для уточнения терминологии следует отметить, что поражения при авариях на ядерных реакторах, особенно при разрушении активной зоны, представляют собой результат воздействия ряда факторов. Если эти поражающие факторы имеют радиационную природу, сочетание их воздействия приводит к так называемому сочетанному радиационному поражению. Если кроме радиационных действуют и поражающие факторы иной природы – к комбинированному (например, радиационно-термическому) поражению.

Согласно ранее доминировавшим представлениям, *единственным* средством защиты персонала от облучения продуктами деления мог служить лишь фактор времени. Однако проведённые в ИЯИ исследования показали, что существует *дополнительная* возможность снижения вредного воздействия средствами индивидуальной защиты (СИЗ) на основе материалов, в состав которых включены добавки из тяжёлых металлов. Это утверждение следует из анализа структуры радиационных полей, медико-биологических последствий облучения, а также свойств защитных материалов [1], изложенных ниже.

Первым фактором, оказывающим наибольшее вредное воздействие, является внешнее излучение фотонов, спектр которых простирается до энергии  $E_{\phi} \approx 2200$  кэВ. Оно поражает кроветворные органы, в первую очередь красный



костный мозг, что может вызвать изменение состава крови. При аварийном неконтролируемом повышенном облучении этот фактор приводит к возникновению острой лучевой болезни (ОЛБ). В зависимости от проникающей способности фотонное излучение продуктов деления можно представить в виде двух компонент: «жесткого», имеющего глубину проникновения свыше 15 см, и «мягкого» – до 15 см. Защитой от жесткого компонента (первичное гамма-излучение  $E_{\phi} > 300$  кэВ) служит только фактор времени.

Воздействие мягкого компонента, имеющего сложную структуру (первичное гамма-излучение  $E_{\phi} < 300$  кэВ, характеристическое излучение, вторичное излучение, формируемое в среде при рассеянии, тормозное излучение электронов бета-распада) также ослабляется защитой временем. Однако исследование свойств защитных материалов, оценка соотношения «качество защиты – её вес» показали, что вредное воздействие мягкого компонента можно заметно ослабить, применяя СИЗ из материалов, содержащих тяжёлые металлы. Исследовался гомогенный композиционный материал, состоящий лёгкие элементы (текстильные волокна, пластик, резина), образующих основу, и свинца, удерживаемого в основе химическими или механическими связями. Расчёт показал, что материал, имеющий общую поверхностную плотность  $1 \text{ г/см}^2$  при содержании свинца  $0,5 \text{ г/см}^2$ , даёт возможность примерно вдвое уменьшить дозу за счёт ослабления мягкого компонента.

Второй поражающий фактор – это внешние излучения, имеющие небольшую проникающую способность (1 – 5 см), в основном бета-излучение, для защиты от которого применяют материалы из лёгких элементов с поверхностной плотностью  $0,6 \text{ г/см}^2$ . Небольшая проникающая способность излучения не означает низкую степень биологического воздействия. Во-первых, такие излучения эффективно поражает органы и ткани вблизи поверхности тела и может привести к формированию субтотального (занимающего до 80% площади кожи) радиационного (лучевого) ожога. В этих условиях возникает особая форма ОЛБ, которая характеризуется взаимоотягивающим влиянием поражения костного мозга и лучевого ожога [1]. Во-вторых, при торможении электронов в материале генерируется характеристическое и тормозное излучения. Интенсивность последнего пропорциональна среднему атомному номеру вещества защиты и квадрату граничной энергии бета-спектра. Следовательно, соотношение лёгких и тяжёлых элементов в гомогенном защитном материале должно быть сбалансировано, т.к. увеличение концентрации металла в стремлении максимально подавить внешнее фотонное излучение может привести к заметному росту мягкого компонента за счёт генерации бета-лучами вторичного тормозного излучения. Оптимальным считается, что поверхностная плотность свинца должна составлять  $0,5 \text{ г/см}^2$  при общей поверхностной плотности материала  $1 \text{ г/см}^2$ , что находится в согласии с расчётом защиты от мягкого компонента. Общим требованием к материалам является ограничение среднего атомного номера, вычисляемого по так называемому правилу Виарда,  $Z \leq 40$ .

Вес защитной одежды составляет около 20 кг, что не может не отразиться на её эргонометрических свойствах, т.е. вследствие применения такой одежды может снизиться эффективность защиты временем. В связи с этим актуальна задача оценки возможности и границ применимости СИЗ. Поскольку носимые СИЗ неспособны существенно понизить воздействие жесткого компонента, кардинальное значение приобрело выяснение роли слабо проникающих компонентов излучения на течение ОЛБ. В освещении этого вопроса большую ценность имеют медицинские данные, полученные в 1961 г. при лечении 122 моряков аварийной атомной подводной лодки К-19. Проведённый корреляционный анализ уровня лейкоцитов в различные периоды развития ОЛБ и доз мягкой компоненты подтвердил, что мягкий компонент оказывает существенное взаимоотягивающее влияние на восстановление кровяных органов и в целом на течение ОЛБ.

Помимо радиационно-защитных свойств материал должен быть воздухо- и паропроницаемым, способным драпироваться на теле, технологичным для швейной промышленности, отвечать требованиям эргономики пожарного дела (действия в условиях высоких температур, агрессивных сред), иметь стабильные свойства в течение срока эксплуатации, в том числе после санобработки. Для достижения требуемых свойств и по экономическим причинам в настоящее время используется гетерогенная, многослойная, защита (костюмы "РЗК"). В гетерогенной защите бета-защитный слой предлагает гамма-защитному слою. Также в гетерогенную защиту можно включать слой, подавляющий вторичное характеристическое излучение, испускаемое «основным» гамма-защитным слоем. В этом случае подлежащим должен быть «основной» слой [1, с. 202].

Кроме перечисленных факторов существует опасность радиоактивного загрязнения поверхности кожи пылью, жидкостями и т.п., а также проникновение в организм радиоактивных газов и аэрозолей через дыхательные пути и пищеварительный тракт. Защитой от данных воздействий служат изолирующие скафандры и дыхательная аппаратура, которые в публикации не рассматриваются.

В дальнейшем представление аварийного фотонного излучения в виде двух компонент – мягкого и жесткого дало возможность рассчитывать параметры защиты в аналитической форме. Проведённый в ИЯИ анализ фотонного спектра по энергиям, интенсивности, проникающей способности показал, что эффективная энергия жесткого компонента составляет 770 кэВ ( $E_{\text{эфф.ж}}$ ), мягкого – 120 кэВ ( $E_{\text{эфф.м}}$ ). Исследования также позволили сделать вывод, что для испытаний радиационно-защитных свойств текстильных материалов в условиях лаборатории достаточно ограничиться областью эффективной энергии мягкого компонента  $E_{\text{эфф.м}}$ , имеющей значение около 120 кэВ [2, 3].

Результат проведённых исследований представлены в виде графика (рис. 1), на котором совмещены данные расчётов в 2-х компонентном приближении и экспериментальные данные. Расходящиеся кривые охватывают область значений параметров, вычисленных по разным методикам с учётом точности ядерно-физических данных. С данными расчёта совпадают экспериментальные данные, полученные при испытании первых образцов свинцовосодержащих текстильных материалов, которые были проведены в условиях радиоактивного загрязнения грунта (мощность дозы 35 Р/час) в районе ЧАЭС в ноябре 1987 г.

Коэффициент ослабления гамма-излучения

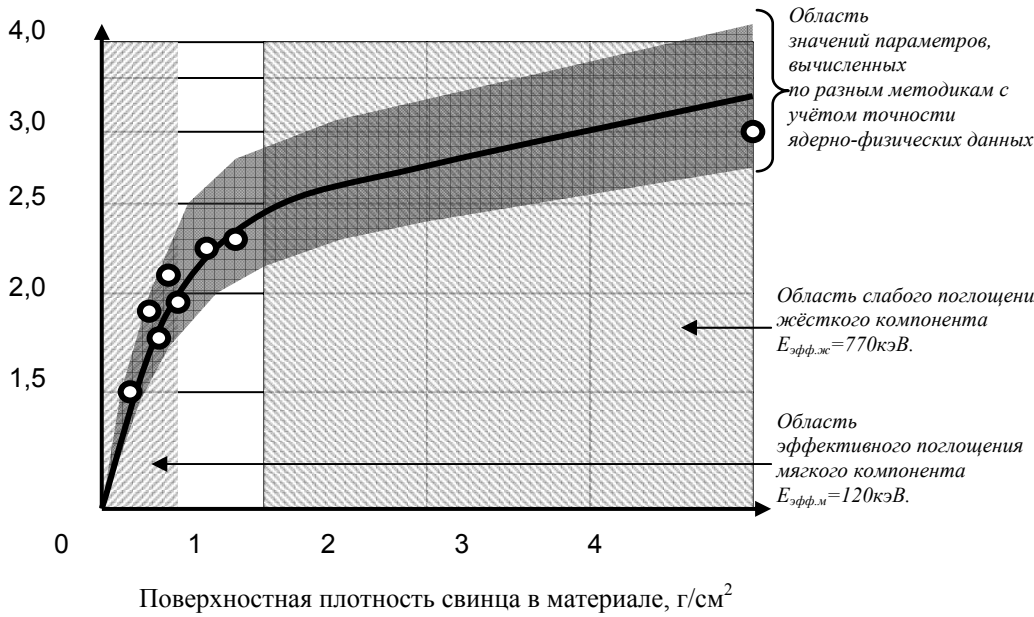


Рис. 1. Зависимость коэффициента ослабления гамма-излучения продуктов деления от поверхностной плотности свинца в радиационно-защитном композиционном материале.

Из рисунка видно, что по мере роста содержания свинца в материале (до  $0,5 \text{ г/см}^2$ ) наблюдается экспоненциальный рост эффективности защиты до некоторого предела (уменьшение дозы в 1,7 – 2 раза), определяемого поглощением мягкого компонента; бета-излучение задерживается практически полностью. Этому соответствует начальный крутой участок графика, причём данные измерений располагаются на экспоненте, соответствующей эффективной энергии  $E_{\text{эфф.м.}} \approx 120 \text{ кэВ}$ . Увеличение в материале содержания свинца свыше  $1 \text{ г/см}^2$  не приводит к существенному увеличению защитного эффекта из-за влияния жёсткого компонента, что иллюстрируется экспериментальными точками, которые располагаются на пологом участке графика – экспоненте, соответствующей эффективной энергии  $E_{\text{эфф.ж.}} \approx 750 \text{ кэВ}$ . Представленные данные позволили обосновать сбалансированное соотношение массы и эффективности радиационно-защитных свойств костюма нового типа.

Выбор свинца в качестве поглощающей добавки обусловлен следующим. Ослабление потока мягкого компонента определяется в основном фотопоглощением и хорошо описывается экспоненциальным законом:

$$I = I_0 \exp(-\mu d), \quad (1)$$

где  $I_0$  — исходный поток фотонов определённой энергии;  $I$  — тот же поток, ослабленный материалом;  $\mu$  — массовый коэффициент ослабления;  $d$  — поверхностная плотность материала. Нарращивание  $d$  повышает защитные свойства, но ведёт к увеличению массы одежды. Величина  $\mu$  указывает степень ослабления излучения в зависимости от состава материала и функционально связана с атомным номером элемента  $Z$  и энергией гамма квантов  $E$  соотношением:

$$\mu = f(Z^5/E^\nu), \quad (2)$$

(где показатель  $\nu \approx 2,5$  в области  $E_{\text{эфф.м.}}$ ), откуда следует, что для эффективного поглощения фотонов защитный материал должен содержать атомы тяжёлых металлов, например, свинца, висмута. Из них наиболее широко используется свинец.

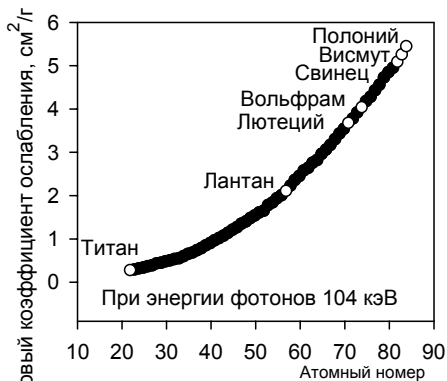


Рис. 2. Зависимость массового коэффициента ослабления от атомного номера

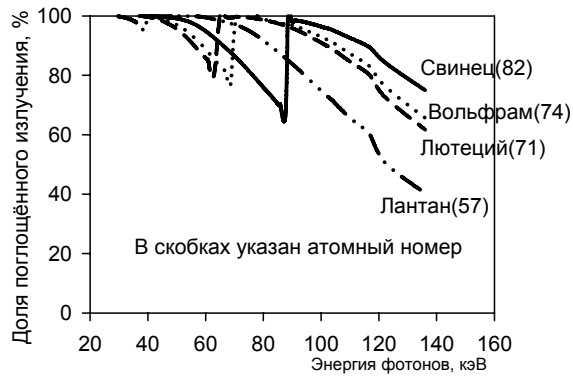


Рис. 3. Защитные свойства материалов с содержанием металла  $0,6 \text{ г/см}^2$

На рисунке 2 представлена зависимость  $\mu$  от  $Z$  для элементов от титана до полония при фиксированной энергии квантов 104 кэВ [4]. В этом интервале  $\mu$  монотонно растет с увеличением  $Z$ , начиная с  $\mu = 0,258 \text{ см}^2/\text{г}$  для титана, до  $\mu = 5,07 \text{ см}^2/\text{г}$  для свинца. Как следствие, при одинаковой поверхностной плотности  $d = 0,6 \text{ г}/\text{см}^2$ , защита из титана в 21 раз слабее защиты из свинца. Для сравнения: масса  $1 \text{ м}^2$  защиты, обеспечивающей двукратное ослабление дозы, содержит свинца 5,8 кг, вольфрама – 7,4 кг, лутеция – 8,3 кг, лантана – 15,2 кг. Эти примеры четко определяют преимущество тяжелых элементов в качестве поглощающих добавок в композиционных радиационно-защитных материалах.

Для их корректного сравнения необходимо учитывать еще одну особенность взаимодействия фотонов излучений с веществом. На рисунке 3 показаны энергетические зависимости радиационно-защитных свойств [4] некоторых одноэлементных защит с поверхностной плотностью  $d = 0,6 \text{ г}/\text{см}^2$ . Они имеют нерегулярный ход из-за так называемых «к-скачков», обусловленных затратами энергии кванта для выбивания электрона из к-оболочки атома, что приводит к ослаблению защитных свойств элементов в определенных диапазонах энергий излучения.

Интерес к тематике материалов и СИЗ, имеющих радиационно-защитные свойства, проявляют другие организации, как в России, так и за рубежом. Еще в 90-х годах в Институте стали (Москва), КазХимНИИ, НИИ эластомерных материалов и изделий разрабатывались материалы с поглощающими добавками в виде отходов производства редкоземельных элементов с номерами от лантана до лутеция.

Комплект защитный модульного типа ЗКМТ, предназначенный для защиты личного состава формирований, участвующих в ликвидации последствий аварий радиационного характера от ионизирующего излучения, выпускает ОАО «КазХимНИИ» [6].

Материал «МРЗ», содержащий лантаноиды и лутеций, предлагает ООО "Русские медицинские технологии". Примером зарубежного опыта служат изделия из материала "DEMIRON" компании Radiation Shield Technologies (США, представитель в России ООО «Нижегородский технический центр» [7]). Состав материала компания не раскрывает; выполненный в ИЯИ РАН анализ показывает, что поглощающей добавкой служит, по-видимому, вольфрам с поверхностной плотностью  $0,6 \text{ г}/\text{см}^2$ . Такие материалы могут успешно применяться для защиты от рентгеновских фотонов с энергией до 100 МэВ, особенно в области  $69,5 \div 88 \text{ кэВ}$ , где они имеют определенное преимущество перед свинцом (см. рис. 3). Для работы в аварийных ситуациях на АЭС за свинцом остается безусловное первенство в области эффективной энергии мягкого гамма-компонента  $100 \div 136 \text{ кэВ}$ .

#### Литература

1. Гогин Е.Е., Емельяненко В.М., Бенецкий Б.А., Филатов В.Н. Сочетанные радиационные поражения. – М.: ППО "Известия". – 2000. – 240 с.
2. Бенецкий Б.А., Лифанов М.Н. Основы создания, испытаний и контроля аварийной защитной одежды пожарных от сочетанного облучения // Известия РАН. Серия физическая, 2009, том 73, № 2. – С.268–273.
3. Лифанов М.Н., Бенецкий Б.А., Логинов В.И. Технология контроля радиационно-защитных свойств композиционных материалов и специальной защитной одежды пожарных, охраняющих АЭС // Пожарная безопасность № 2, 2008. – С.92– 95.
4. Маренков О.С., Комяк Н.И. Фотонные коэффициенты взаимодействия в рентгенорадиометрическом анализе: Справочник. – Л.: Энергоатомиздат. Ленингр. отд-ние. – 1988. – 224с.
5. <http://pto-pts.ru>
6. <http://www.kazhimnii.ru/products/zkmt/>
7. <http://ntc-energo.ru>

УДК 502.7:621.039.7

#### ОПРЕДЕЛЕНИЕ ДОПУСТИМЫХ РАДИАЦИОННЫХ ПАРАМЕТРОВ ТЕРРИТОРИЙ

В. Н. Глущенко, Г. Д. Кабдрахимова, В. А. Кудряшев, А. Ж. Тулеушев  
*Институт Ядерной физики, Алматы, Республика Казахстан*

Степень радиационной опасности (радиационного риска) в настоящее время регламентируется в величинах эффективной дозы, **недоступной для измерения**, зависящей от характера использования почв и определяемой достаточно сложными расчетами в условиях реального проживания людей.

Учитывая это, в нормативных документах [1] наряду с основными пределами доз введены производные пределы в виде допустимых уровней некоторых **измеримых** радиационных характеристик допустимых радиационных параметров (ДРП) окружающей среды, обуславливающих получение допустимой дозы только от одного фактора радиационного воздействия, (ингаляции загрязненного радионуклидами воздуха, внешнего излучения, употребления радионуклидов с пищей). Можно назвать эти величины парциальными ДРП.

В связи с многообразием радионуклидов, характеристик территорий и жизнедеятельности населения величины факторов радиационного воздействия и, соответственно, ДРП этих факторов многочисленны и зависят от конкретных условий.

Поэтому, в соответствии с рекомендацией пунктом 5.2.4 НРБ-99: «На основании значений ПГП радионуклидов через органы пищеварения, соответствующих пределу дозы 1 мЗв за год и квот от этого предела,



может быть рассчитана для конкретных условий допустимая удельная активность основных пищевых продуктов с учетом их распределения по компонентам рациона и в питьевой воде, а также с учетом поступления радионуклида через органы дыхания и внешнего облучения» была проведена работа по определению ДРП территорий, результаты которой предлагаются ниже.

Рассматривались характерные для территорий СИП и зон влияния ядерных установок техногенные радионуклиды:  $^3\text{H}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{90}\text{Y}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ;

В работе использованы рекомендации Доклада NRPB W36 National Radiological Protection Board Great Britain, W B Oatway и S F Mobbs [2] и Руководства по радиометрической съемке и радиационному обследованию территорий (MARSSIM) [3], разработанного комитетом представителей соответствующих государственных Агентств США (EPA, NRS, DOE, DOD) под председательством Colleen F. Petullo (декабрь 1997).

Влияние пищевых цепей определено с учетом Рекомендаций Руководства по установлению допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферу (ДВ-98) [4], Технического доклада МАГАТЭ № 472 [5] и Материалов комплексного экологического обследования северной части территории СИП НЯЦ РК [6].

Для выполнения расчетов используется программа Excel MS.

Разработанная система ДРП предназначена для решения задач оценки радиационной опасности территорий, загрязненных техногенными радионуклидами, в частности, территорий СИП. Изложенная методология в принципе пригодна и для радионуклидов природного происхождения, но они не рассматриваются, поскольку регламентация природного облучения достаточно полно изложена в действующих нормативных документах.

#### *Методология*

Методической базой системы ДРП является согласованная органами санэпиднадзора Методическая инструкция НЯЦ РК № ГД.60500.00.000 от 19.06.2008 г. «Определение эффективной дозы ионизирующего излучения персонала и населения» [7].

Эффективная доза населения является суммой дозовых нагрузок  $E_R$  от имеющихся на участках территории техногенных радионуклидов  $R$ .

$$E = \sum_R E_R. \quad (2.1)$$

При этом эффективная доза  $E_R$  является суммой парциальных доз  $E_{Rj}$  по всем  $j$ -тым факторам радиационного воздействия, например:

- 7) внешнее облучение гамма-излучением,
- 8) внешнее облучение бета-излучением,
- 9) внешнее облучение «грязью» рук,
- 10) внутреннее облучение от ингаляции радионуклидов,
- 11) внутреннее облучение от поступления радионуклидов в пищу,
- 12) внутреннее облучение от поступления радионуклидов с «грязью» рук.

$$E_R = \sum_j E_{Rj} \quad (2.2)$$

Соотношение парциальных доз зависит от вида радионуклида и для каждого радионуклида примерно постоянно.

Цель системы ДРП заключается в определении связи эффективной дозы, получаемой населением на данном участке, с измеряемыми параметрами радиационной обстановки и установлении величин этих параметров, соответствующих эффективной годовой дозе  $E_K = 1$  мЗв.

Изменяемыми параметрами радиационной обстановки  $P_R$  являются:

- 1) мощность дозы  $P$  (эквивалентной  $P_n$  или амбиентной эквивалентной  $P_{n10}$ ) гамма-излучения, Зв/ч;
- 2) плотность потока  $N_\beta$  бета-излучения от почвы, част/мин\*см<sup>2</sup>;
- 3) удельная активность радионуклида  $R$  в почве  $A_{mR}$ , Бк/кг;
- 4) поверхностная загрязненность почвы (плотность выпадений)  $A_{sR}$ , Бк/м<sup>2</sup>.
- 5) Некоторые другие параметры

Параметры физически (математически) связаны между собой.

За основной параметр оценки радиационной обстановки принята величина удельной активности почв  $A_{mR}$ . Бк/кг.

Для каждого  $j$ -того фактора радиационного воздействия радионуклида  $R$  в соответствии Методической инструкцией, НРБ-99 и справочными данными определена величина годовой эффективной парциальной дозы  $e_{Rj}$  (мЗв\*кг/Бк\*год), обусловленная наличием в почве единичной удельной активности радионуклида  $R$  (парциальный дозовый коэффициент). Удельная активность почвы  $A_{mRj1}$  (Бк/кг), обуславливающая эффективную дозу  $E = 1$  мЗв/год в условиях только  $j$ -того монофакторного воздействия радионуклида  $R$  (предельная удельная активность для уровня дозы  $E = 1$  мЗв/год), равна:

$$A_{mRj1} = 1/e_{Rj} \quad (2.3)$$

При наличии в почве удельной активности  $A_{mR}$  радионуклида  $R$  эффективная доза  $E_{Rj}$  (мЗв/год) от  $j$ -того монофакторного воздействия этого радионуклида равна:

$$E_{Rj} = A_{mR} / A_{mRj1} \quad (2.4)$$

Величина эффективной дозы  $e_R$  (мЗв\*кг/Бк\*год), обусловленная наличием в почве единичной удельной активности радионуклида  $R$  (дозовый коэффициент радионуклида) равна сумме парциальных дозовых коэффициентов:

$$e_R = \sum_j e_{Rj} = \sum_j (1 / A_{mRj1}) \quad (2.5)$$

Удельная активность  $A_{mR1}$ , обуславливающая дозу  $1$  мЗв/год в условиях воздействия всех радиационных факторов только радионуклида  $R$  (предельная удельная активность), равна:

$$A_{mR1} = 1/\epsilon_R; \quad (2.6)$$

При этом

$$1/A_{mR1} = \sum_j (1/A_{mRj1}) \quad (2.7)$$

При наличии в почве радионуклида R удельной активностью  $A_{mR}$  эффективная доза (мЗв/год) от этого радионуклида будет равна:

$$E_R = \epsilon_R * A_{mR} = A_{mR} * (1/A_{mR1}) = A_{mR} * \sum_j (1/A_{mRj1}) \quad (2.8)$$

Все измеряемые параметры  $\Pi_R$  радионуклидов R пропорциональны удельной активности  $A_{mR}$ , и граничной удельной активности  $A_{mR1}$  соответствует значения граничных измеряемых параметров  $\Pi_{R1}$ .

Коэффициенты пересчета  $K_{R1}$  от граничных значений  $A_{mR1}$  к граничным значениям других измеряемых параметров  $\Pi_{R1}$  определяются по физическим формулам. Важным для практики является то, что для любых измеряемых параметров любого радионуклида сохраняется соотношение:

$$A_{mR}/A_{mR1} = \Pi_R/\Pi_{R1} \quad (2.9)$$

Таким образом, эффективная доза (мЗв/год) от находящейся в почве удельной активности  $A_{mR}$  радионуклида R может быть оценена по формуле:

$$E_R = \Pi_R / \Pi_{R1}, \text{ мЗв} \quad (2.10)$$

В условиях действия всех радионуклидов эффективная доза E (мЗв) от находящихся в почве радионуклидов оценивается по формуле:

$$E = \sum_R (\Pi_R * \Pi_{R1}) \quad (2.11)$$

Следовательно, возможна оценка радиационной опасности территорий по измерениям одного любого параметра присутствующих радионуклидов. На территориях, благополучных по радиационной опасности, должно выполняться условие:

$$E = \sum_R (\Pi_R/\Pi_{R1}) < 1 \text{ (мЗв/год)} \quad (2.12)$$

Изложенный подход к определению потенциальной радиационной опасности территорий позволяет определять величины граничных параметров при ограниченном использовании территорий (например, при отсутствии пахотного земледелия или неупотреблении продуктов с данной территории) простым исключением из суммы в формуле 2.8 соответствующих отношений  $1/A_{mRj1}$ , либо учесть ранее неучтенные факторы радиационного воздействия радионуклидов.

При установлении ДРП необходимо принимать коэффициент запаса не менее 2.

Для оценки радиационной опасности территорий по формуле 2.15 в общем случае необходимо знание величин хотя бы одного измеряемого параметра по каждому из радионуклидов:  $E = \sum_R \Pi_R * \Pi_{R1}$ . Достаточно часто загрязнение территорий характеризуется постоянством отношений их выпадений и удельных активностей почв. В этом случае можно путем введения комбинированных предельных параметров  $\Pi^{+R(2)}_{kR(1)}$  для одного радионуклида R(1) с учетом присутствия другого радионуклида R(2), снизить необходимое количество измерений без ущерба для радиационной безопасности.

Комбинированный предел удельной активности определяется по соотношению [3]:

$$1/\Pi^{+R(2)}_{kR(1)} = 1/\Pi_{kR(1)} (1 + K * \Pi_{kR(1)} / \Pi_{kR(2)}), \quad (2.13)$$

где:  $K = \Pi_{R(2)} / \Pi_{R(1)}$  – среднее отношение активностей или других параметров радионуклидов.

Разработанная методика прошла экспертизу Казахской Республиканской санэпидстанции в виде Методической инструкции ИЯФ НЯЦ РК «Определение допустимых радиационных параметров территорий» и согласована Департаментом санэпиднадзора РК.

По разработанной методике были рассчитаны парциальные ДРП некоторых техногенных радионуклидов для сельскохозяйственных территорий (Таблица 1).

Эффективные дозы рассчитывались по формулам Методической инструкции.

В расчетах использованы ингаляционные и пероральные дозовые коэффициенты для критических групп населения, принятые НРБ-99.

Время пребывания населения на открытом воздухе принято 30 %, коэффициент экранирования гамма-излучения зданиями 0,4, среднегодовая влажность воздуха  $9 \text{ г/м}^3$ , среднегодовая естественная запыленность атмосферы  $1 * 10^{-7} \text{ кг/м}^3$ . Консервативно принято, что в местах деятельности человека (животных) запыленность воздуха  $1 * 10^{-6} \text{ кг/м}^3$ .

Предельные параметры радионуклида  $^{90}\text{Sr}$  определены с учетом вклада дочернего радионуклида  $^{90}\text{Y}$ . В таблицах указывается только активность  $^{90}\text{Sr}$ .

Внешним облучением альфа-частицами поверхностей кожи, закрытых одеждой (90%), пренебрегли.

Удельная активность пыли принята равной удельной активности почвы, толщина слоя пыли на открытых частях кожи 0,1 мм, плотность пыли  $0,5 * 10^{-3} \text{ кг/см}^3$  [2];

Расчет доз бета излучения проведен в предположении равномерного распределения удельной активности радионуклидов до глубины 1 см.

Средний атомный номер среды Z принят равным 14.

Годовое поступление радионуклида ингаляцией определено в предположениях, что удельная активность пыли (аэрозолей) равна удельной активности почвы.

Массы поступления почвы во время приема пищи (эффект грязных рук) оценены величинами 8,3; 18 и 44 гр в год для взрослых, детей и младенцев в возрасте 1-5 лет соответственно.

Потребление продуктов в рационе питания лиц критической группы населения, отличной от взрослого населения, принято пропорциональным годовому объему вдыхаемого воздуха.

Значительная часть территории Республики Казахстан используется в качестве пастбищ мясомолочного животноводства. Учитывая преобладание в рационе сельского населения продуктов собственного производства, годовое потребление мяса юношами и взрослыми лицами принято в количестве 90 кг (45 кг говядины и 45 кг баранины), детьми в возрасте от 1 до 2 лет в количестве 10 кг (5 кг баранины и 5 кг говядины). Потребление молока взрослыми принято в объеме 360 л, детьми в возрасте от 1 до 2 лет в объеме 200 л в год.

Среднее содержание вегетативной массы растений принято 25 % [11]. Пищевой рацион крупного скота принят 16 кг в сутки, овец 2,5 кг/сутки.

Принято использование в пище воды открытых водоемов. Средние коэффициенты распределения и скорости миграции радионуклидов в грунте приняты по Рекомендациям МАГАТЭ [5].

Расчет допустимой удельной активности трития в воде с учетом всех факторов воздействия проведен в консервативном предположении, что источником трития являются грунтовые воды и удельная активность атмосферной влаги равна удельной активности грунтовой (и питьевой) воды. Критической группой населения для трития являются дети в возрасте от 1 до 2 лет. Среднегодовое поступление в организм лиц критической группы населения питьевой воды по соотношению ППП и УВ НРБ-99 составляет 270 л.

Среднегодовое количество поступающей связанной с пищей влаги в организм лиц из населения согласно рекомендации ДВ-98 [4] принимается 256 л/год. Количество поступающей связанной с пищей влаги в организм детей от 1 года до 2 лет в предположении пропорциональности количества пищи объему вдыхаемого воздуха равно 60 л/год.

Среднегодовое поступление органически связанного трития в пищу в организм критической группы населения определено в предположении, что количество органически связанного трития в пище пропорционально доле органических веществ в пище, принятой 20%.

Результаты расчетов показывают, что для каждого радионуклида имеются основные факторы радиационного воздействия, определяющие величину вклада этого радионуклида в дозу. Для трития это употребление воды, для альфа-излучающих радионуклидов плутония и америция ингаляция и излучение пыли на коже, для радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{152,154}\text{Eu}$  мощность гамма-излучения, для радионуклидов  $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$  потребление молока. Другие факторы радиационного воздействия вносят меньший вклад, часто пренебрежимый в сравнении с погрешностью измерений.

При оценке опасности радионуклида целесообразно изучать факторы, определяющие основной вклад этого радионуклида в эффективную дозу.

Таблица 1 Парциальные допустимые удельные активности радионуклидов в почве для территорий, благополучных по радиоэкологической обстановке (менее 1 мЗв вгод), кБк/кг

Радионуклид	$^3\text{H}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{152}\text{Eu}$	$^{154}\text{Eu}$	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
Радиационный фактор							
Внеш. бета- излучение		380	$4,8 \cdot 10^4$	$1,1 \cdot 10^4$	$3,2 \cdot 10^4$		
Пыль на коже		$9,6 \cdot 10^3$	$2,3 \cdot 10^4$	$7 \cdot 10^4$	$2 \cdot 10^4$	1,7	1,7
Гамма- излучение		$5,5 \cdot 10^4$	2,6	1,4	1,4		48
Ингаляция	1,9 (кБк/м <sup>3</sup> )	$2,6 \cdot 10^3$	$2,7 \cdot 10^4$	$2,9 \cdot 10^3$	$2,3 \cdot 10^3$	2,5	3
Грязные руки		430	$9,3 \cdot 10^3$	$3,1 \cdot 10^3$	$1,9 \cdot 10^3$	54	61
Питьевая вода открытых водоемов, кБк/л	77	3	1000	$1,1 \cdot 10^5$	$6,8 \cdot 10^4$	700	1200
Молоко	77	1,6	29	$8,4 \cdot 10^5$	$5,2 \cdot 10^5$	3700	845
Мясо говядина	347	5,3	110	$2,8 \cdot 10^4$	$1,7 \cdot 10^4$	$2,5 \cdot 10^4$	1130
Мясо баранина	347	45	150	$1,8 \cdot 10^5$	$1,1 \cdot 10^5$	$1,6 \cdot 10^5$	$7,2 \cdot 10^3$

Предлагаемая система ДРП позволяет определять допустимые содержания радионуклидов в окружающей среде в различных условиях её использования. Пример такого расчета для территорий лугопастбищного земледелия приведен в стендовом докладе «Допустимые радиационные параметры территорий лугопастбищного земледелия» данной конференции.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. Нормы радиационной безопасности НРБ-99. СП 2.6.1.758-99, Агентство по делам здравоохранения, Республика Казахстан, 1999 г.
2. W B Oatway and S F Mobbs “Methodology for Estimating The Doses to Members of the Public from the Future Use of Land Previously Contaminated with Radioactivity”, Report NRPB W36 National Radiological Protection Board Great Britain, 2003.
3. Руководство по радиометрической съемке и радиационному обследованию территорий (MARSSIM), разработано Комитетом из представителей государственных Агентств США (EPA, NRS, DOE, DOD) под председательством Colleen F. Petullo, декабрь 1997.
4. Руководство по установлению допустимых выбросов радиоактивных веществ в атмосферу (ДВ-98), Госкомэкологии, Минатом РФ. 21.01.1999 г.
5. Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Terrestrial and Freshwater Environments, Technical Reports series, No 472, International Atomic Energy Agency, January, 2010.

6. Актуальные вопросы радиэкологии Казахстана. Выпуск I Радиэкологическое состояние «северной» части территории Семипалатинского испытательного полигона, Павлодар, ТОО «Дом печати» 2010
7. Методическая инструкция НЯЦ РК № ГД.60500.00.000 от 19.06.2008 г. «Определение эффективной дозы ионизирующего излучения персонала и населения».

## ОСОБЕННОСТИ АККУМУЛЯЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ В ОСНОВНЫХ КОМПОНЕНТАХ ЛУГОВЫХ БИОГЕОЦЕНОЗОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА

Р.П. Плисак, С.В. Плисак

*Институт ботаники и фитоинтродукции МОН Республика Казахстан, г. Алматы*

Многими исследованиями, проведёнными в Украине, Белоруссии, северо-востоке Европейской части РФ, Якутии [1,2,3,4,5,6] выявлена интенсивная миграция радионуклидов в гидроморфных экосистемах. Исследованиями [7,8,9] установлено, что радионуклиды в сочетании с действием других экологических факторов, вызывают существенные изменения в растительном покрове. Происходит смена видового состава сообществ, изменение их структуры и биомассы, проективного покрытия, яркости, направления и скорости сукцессий.

Рассматриваемая территория располагается в пределах сухих дерновиннозлаковых степей на каштановых почвах и опустыненных полынно-ковыльных степей на светлокаштановых почвах. По межпочечным понижениям и окраинам озёр формируются сообщества солонцово-солончакового типа: ломкоколосниковые (*Psathyrostachys juncea*), чингилловые (*Halimodendron halodendron*), чиевые (*Achnatherum splendens*), селитрянковые (*Nitraria sibirica*), сарсазановые (*Halocnemum strobilaceum*), поташниковые (*Kalidium foliatum*) и др.

В поймах небольших рек распространены мезофитные злаково-разнотравные сообщества, сложенные *Elytrigia repens*, *Calamagrostis epigeios*, *Phragmites australis*, *Poa angustifolia*, *Inula britannica*, *Sanguisorba officinalis*, *Glycyrrhiza uralensis*, *Galatella biflora*, *G. angustissima* и др. В сложении этих сообществ иногда принимают участие деревья и кустарники *Populus tremula*, *P. nigra*, *Salix viminalis*, *S. pentandra*, *S. cinerea*, *S. rosmarinifolia*, *Rosa laxa*, *R. majalis*, *R. acicularis*, *R. spinosissima*. Для надпойменных террас характерны сообщества, сложенные *Puccinellia dolicholepis*, *Aeluropus litoralis*, *Leymus angustus*, *Achnatherum splendens*. Луговые биогеоценозы очень разнообразны. Видовое разнообразие луговых сообществ высокое.

В долинах малых рек и ручьёв низкогорного массива Дегелен основным источником радиоактивного загрязнения интразональных биогеоценозов являются поверхностные воды, вытекающие из штолен. Из других антропогенных факторов, влияющих на формирование растительности, существенное значение имеют демилитаризация штолен, уничтожение поверхностного слоя почв и выжигание травостоя луговых ценозов.

Одним из объектов исследований является девясилково-пырейное (*Elytrigia repens* + *Inula britannica*) сообщество. Оно характерно для луговых обсыхающих почв. Мощность экспозиционной дозы (МЭД)  $\gamma$ -излучения на загрязнённом участке составляет 100-120 мкр/час (на контроле – 10-12 мкр/час). Эти биогеоценозы формируются на повышенных участках поймы в условиях нерегулярного поверхностного затопления и слабого грунтового увлажнения. По механическому составу луговые обсыхающие почвы – супесчаные или легкосуглинистые. Для них характерно высокое содержание гумуса. Мощность гумусового горизонта колеблется от 34 до 58 см.

Девясилково-пырейное сообщество (*Elytrigia repens* + *Inula britannica*) – мезофитное. В экобиоморфологическом составе растений, слагающих фитоценозы загрязнённого и контрольного участков, заметных различий не выявлено. Видовое разнообразие на загрязнённом участке в 1,9-2,2 раза выше, чем на контроле. Это обусловлено многими факторами: радиационным загрязнением, появлением радиоактивных ручьёв после подземных ядерных взрывов и прекращением водопоявления после демилитаризации штолен, выжиганием растительности, нарушением поверхности почвы (прокладка дорог, загрязнение мусором, обломками бетона и т.д.). Совокупное действие этих факторов вызывает появление многих видов: сорных однолетников и двулетников – *Lactuca seriola*, *Artemisia absinthum*; ксерофитных полукустарничков – *A. austriaca*, *A. marschalliana*, не встречающихся на контрольном участке.

Действие вышеперечисленных факторов усиливает и гетерогенность горизонтальной структуры сообществ на загрязнённом участке. Радиационное загрязнение вызвало фенологический сдвиг у некоторых растений в исследуемых сообществах: у *Potentilla virgata* фаза плодоношения на загрязнённом участке наступила раньше, чем на контроле, а у *Achillea asiatica* фаза цветения – позже, чем на контроле.

Доминирующие виды (*Elytrigia repens* и *Inula britannica*) и большинство сопутствующих видов на загрязнённом участке отлично и хорошо развивались, на контроле – жизнеспособность большинства растений была удовлетворительной. Только у немногих видов – хорошей.

Четкого разделения на ярусы в данном сообществе не выявлено. На вертикальную структуру ценозов сложившиеся радиэкологические условия заметного влияния не оказывают. Общее проективное покрытие на загрязнённом участке достигало 55-90% (на контроле – 80-100%). Покрытие почвы растениями колебалось от 55 до 75% (на контроле – от 50 до 80%).

Количество особей доминирующих растений на загрязнённом участке на 1 м<sup>2</sup> в колебалось у *Elytrigia repens* от 10 до 18 (на контроле – от 15 до 23), у *Inula britannica* – от 2 до 13 (на контроле – от 6 до 26).

Высота одного доминирующего растения на загрязнённом участке у *Elytrigia repens* достигала 30-79 см (на контроле – 35-75 см), у *Inula britannica* – 20-50 см (на контроле – 20-70 см).

Средний вес одного доминирующего растения *Elytrigia repens* на загрязнённом участке составлял 2,0-2,7г (на контроле – 2,3-2,9г), у *Inula britannica* – 1,9-5,3г (на контроле – 2,4-6,4г).

Величина надземной биомассы в данном сообществе на загрязнённом участке достигала 376-553,4 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 413-987 г/м<sup>2</sup>).

Вес однодольных растений на загрязнённом участке достигал 225-489 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 247-795 г/м<sup>2</sup>). Вес двудольных растений на загрязнённом участке составлял 64,4-151,0 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 166,1-192,6 г/м<sup>2</sup>).

Глубина проникновения корней растений на загрязнённом участке составляла 70 см (на контроле – 120-130 см). Наиболее насыщен корнями растений слой почвы на загрязнённом участке 15-35 (40) см, на контроле – 7-21 (25) см.

Вес подземных органов у *Elytrigia repens* на загрязнённом участке в слое почвы 0-10 см составлял 41,6-51,2 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 54,4-228,0 г/м<sup>2</sup>), в слое 10-30 см – 20-58,8 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 77,6-136 г/м<sup>2</sup>). Вес подземных органов *Inula britannica* на загрязнённом участке составлял в слое почвы 0-10 см 15,2-16,8 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 23,2-76,0 г/м<sup>2</sup>), в слое 10-30 см – 3,6-4,4 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 12-23,2 г/м<sup>2</sup>). Средний вес корня одной особи *Elytrigia repens* на загрязнённом участке составлял 4,2-5,4г (на контроле – 4,9-5,5г). Средний вес корня одной особи *Inula britannica* на загрязнённом участке составлял 5,6-10,6г (на контроле – 4,6-8,8г).

Радиационное загрязнение в этом сообществе вызвало развитие у отдельных особей некоторых видов растений адаптационных признаков – изменений в морфологической структуре (торможение роста у *Berteroa incana* и *Melilotus albus*, дихотомия стебля у *Lepidium latifolium*, изменение направления роста стебля у *L. latifolium* и *M. albus*, изменение формы и размера пластинки лепестка у *L. latifolium*, нарушение филлотаксиса у *L. latifolium*, изменение формы завязи у *M. albus*) и анатомической структуре (увеличение размеров первичной коры у *B. incana* и *M. albus*, уменьшение объёма центрального цилиндра и размеров сердцевинной паренхимы у *L. latifolium*, увеличение размеров клеток эпидермиса у *L. latifolium*) надземной части растений.

В данном биогеоценозе почвы загрязнены техногенными радионуклидами в верхних горизонтах. Основными загрязнителями луговых обсыхающих почв являются Cs<sup>137</sup> и β – излучатели, в меньшей степени α – излучатели. В слое почв 0-4 см Cs<sup>137</sup> аккумулируется 850,4 Бк/кг, в слое 0-10 см – 4130 Бк/кг, в слое 10-30 см – 12 Бк/кг (на контроле – в слое 0-7(9) см – 45-69 Бк/кг). Содержание интегральной β-активности в слое 0-19 см составляет 28 800 Бк/кг, в слое 10-30 см – 1390 Бк/кг (на контроле – в слое 0-9 см – 280 Бк/кг). Содержание интегральной α-активности в слое 0-10 см составляет 3020 Бк/кг, в слое 10-30 см – 3850 Бк/кг (на контроле – в слое 0-10 см – 560 Бк/кг).

В золе корней доминирующего растения *Elytrigia repens* содержание Cs<sup>137</sup> колеблется от 5400 до 7906 Бк/кг (на контроле – от 32 до 45 Бк/кг). В золе надземной части этого растения содержание Cs<sup>137</sup> достигает 72-325 Бк/кг (на контроле 33-47 Бк/кг). Содержание интегральной β-активности в золе корней *Elytrigia repens* колеблется от 11600 до 113600 Бк/кг (на контроле – от 1470 до 4000 Бк/кг), в золе надземной части – от 23800 до 122500 Бк/кг (на контроле – от 3200 до 4300 Бк/кг). Содержание интегральной α-активности в золе корней этого растения достигает 3300-6530 Бк/кг (на контроле – 603-1200 Бк/кг), в золе надземной части растения – 390 Бк/кг (на контроле – 210 Бк/кг).

В золе корней доминирующего растения *Inula britannica* содержание Cs<sup>137</sup> колеблется от 682 до 3100 Бк/кг (на контроле – от 34 до 236 Бк/кг). В золе надземной части этого растения содержание Cs<sup>137</sup> достигает 680 – 2418 Бк/кг (на контроле – 41-84 Бк/кг). Содержание интегральной β-активности в золе корней *Inula britannica* колеблется от 79100 до 115000 Бк/кг (на контроле – от 10300 до 49200 Бк/кг), в золе надземной части от 84000 до 229400 Бк/кг (на контроле – от 6930 до 7800 Бк/кг). Содержание интегральной α-активности в золе корней этого растения достигает 1700-3100 Бк/кг (на контроле – 1100-2100 Бк/кг), в золе надземной части растения – 480 Бк/кг (на контроле – 390 Бк/кг).

Совокупное действие перечисленных радиоэкологических факторов способствует изменениям в формировании луговых сообществ. Это – увеличение видового разнообразия, фенологический сдвиг в наступлении генеративных фаз, отсутствие у некоторых растений генеративных органов, усиление гетерогенности горизонтальной структуры сообществ, снижение величины надземной биомассы, уменьшение глубины проникновения корней растений и биомассы подземных органов, формирование растений-тератов.

#### Литература

1. Собакин П.И. и др. Поведение радионуклидов в переувлажнённых почвах гидроморфных систем Урала и Якутии//Экология, 1986. 1, с.30-32.
2. Ильин М.И., Перепелятников Г.П. Миграция цезия-137 в системе почва - луговые растения//Радиобиологический съезд: Тезисы докладов-Киев, 1993, с.22.
3. Балашов Л.С. Сипайлова Л.М. Изменение растительного покрова лугов в бассейне Припяти в связи с аварией на ЧАЭС//IV Междунар. научно-техн. конф. «Чернобыль-94»: Тезисы докл. Зеленый мыс, 1994, с.148-149.
4. Парфенов В.И., Мартинович Б.С. и др. Радиоактивное загрязнение растительности Белоруссии. Минск//Наука и техника, 1995, 582 с.
5. Бакунов Н.А. и др. Основные закономерности поведения радионуклидов в трофических цепях наземной и водной экосистем//Междунар. научно-техн. конф. «Чернобыль-96»: Тезисы докл. Зеленый мыс, 1996, с.271.
6. Спиринов В.В. и др. Радиоэкологические аспекты поведения долгоживущих радионуклидов в пойменных ландшафтах верхнего течения р. Течь//Экология, 1997.-5, с.361-368.
7. Дубинин Н.П. Эволюция популяций и радиация. М. 1966, 743с.
8. Карагодин В.И. Проблемы пострадиационной реабилитации. М. 1966, 391с.
9. Тимофеев-Ресовский Н.В. Краткая характеристика теории эволюции. М. Наука, 1969, 407с.

## ОСОБЕННОСТИ НАКОПЛЕНИЯ ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ СТЕПНЫМИ РАСТЕНИЯМИ НА ПЛОЩАДКЕ «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ» БЫВШЕГО СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

<sup>1</sup>Ларионова Н.В., <sup>1</sup>Лукашенко С.Н., <sup>1</sup>Кундузбаева А.Е., <sup>2</sup>Глуценко В.Н.,

<sup>2</sup>Коваль А.П., <sup>1</sup>Иванова А.Р., <sup>1</sup>Келлер С.А.

<sup>1</sup>- Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, г. Курчатов, Казахстан

<sup>2</sup>- Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан

### ВВЕДЕНИЕ

Актуальность исследований особенностей накопления искусственных радионуклидов степными растениями обусловлена, прежде всего, проведением масштабных работ по передаче части земель бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП) в хозяйственный оборот. В этих условиях параметры перераспределения радионуклидов в системе почва-растение являются неотъемлемым звеном для прогноза уровней радиоактивного загрязнения продуктов питания, и как следствие, используются при расчете доз для населения, проживающего на территории СИП.

Отдельные работы по изучению особенностей накопления радионуклидов растениями на территории бывшего СИП проводились и ранее, однако более регулярные исследования в этом направлении были начаты сравнительно недавно. Впервые для получения достоверных данных, характеризующих накопление искусственных радионуклидов определенными видами растений, такие работы были проведены на площадке «Дегелен». Так, в районе штолен № 176 и № 177, в условиях контроля большинства основных влияющих факторов, исследовались особенности перераспределения и динамики содержания радионуклидов в надземной части растений лугового биогеоценоза.

На сегодняшний день относительно слабо изученным, причем не только для территории СИП, но и для международных исследований в целом, остается вопрос о накоплении растениями трансурановых радионуклидов <sup>239+240</sup>Pu и <sup>241</sup>Am. В связи с этим появилась необходимость в достоверной информации о параметрах их перехода из почвы в надземную часть растений, получение которой возможно лишь при наличии высокого уровня радиоактивного загрязнения почв. Таким образом, в качестве исследуемой территории на СИП была выбрана площадка «Опытное поле», характеризующаяся высоким содержанием трансурановых радионуклидов <sup>239+240</sup>Pu и <sup>241</sup>Am в почвах.

### 1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

#### Проведение экспедиционных работ

Участки для проведения исследований выбраны на основании данных площадного распределения мощности экспозиционной дозы (МЭД) и результатов измерений радиационных параметров (плотности потока β-частиц и МЭД) во время проведения экспедиционных работ. Исследовательские площадки (всего 32) заложены на всех, выявленных ранее, 12-ти эпицентрах проведения различных наземных испытаний на площадке «Опытное поле», по 3-4 площадки на каждом из эпицентров.

Изучение растительного покрова проводилось отдельными методами геоботанического описания с выделением основных типов растительности, определением проективного покрытия и видового состава растений. Объектами исследования выбраны основные ценозообразователи сухой степи: ковыль (*Stipa capillata*), типчак (*Festuca alesiacca*) и полынь (*Artemisia sublessingiana*, *A. marschalliana*). С каждой площадки сопряженно отобраны надземные части исследуемых видов растений и смешанная проба почвы (методом конверта на глубину 5 см).

#### Физико-химический анализ почв

Механический состав почвы определялся пипет-методом, устанавливающим количественное соотношение в процентах почвенных фракций, охватывающих ту или иную группу частиц разного размера. Определение содержания в почве гумуса проводилось по методу Тюрина в модификации Никитина. Измерение кислотности почвы проводилось методом, основанным на измерении величины рН водной вытяжки пород электродной системой, состоящей из индикаторного стеклянного электрода, потенциал которого определяется активностью водородных ионов в растворе, и вспомогательного проточного электрода сравнения с известным потенциалом. Карбонатность определялась объемным методом по Голубеву. Наиболее доступные растениям формы нахождения радионуклидов в почвах определялись методом последовательного выщелачивания различными реагентами (водой – водорастворимая форма и 1М раствором уксуснокислого аммония – обменная форма) и измерением их содержания в полученных вытяжках.

#### Радионуклидный анализ

Анализы по измерению удельной активности радионуклидов в пробах почвы и растений проводились в соответствии с гостированными методическими указаниями на поверенной лабораторной аппаратуре. Определение удельной активности радионуклидов <sup>137</sup>Cs и <sup>241</sup>Am проводилось на гамма-спектрометре Canberra GX-2020, <sup>90</sup>Sr – на бета-спектрометре «Прогресс», <sup>239+240</sup>Pu определяли радиохимическим выделением с последующим измерением на альфа-спектрометре Canberra, мод.7401. Концентрация <sup>137</sup>Cs в растениях определялась в сухих (предварительно вымытых) измельченных образцах, <sup>241</sup>Am, <sup>90</sup>Sr и <sup>239+240</sup>Pu – в золе, с последующим пересчетом на сухое вещество. Предел обнаружения по <sup>137</sup>Cs составлял 0,1 Бк/кг (для проб растений) и 4 Бк/кг (для проб почвы), <sup>241</sup>Am – 0,05 Бк/кг и 1 Бк/кг, <sup>239+240</sup>Pu – 0,1 Бк/кг и 1 Бк/кг соответственно, <sup>90</sup>Sr – 100 Бк/кг. Погрешность измерений для <sup>137</sup>Cs и <sup>241</sup>Am не превышала 10-20 %, <sup>90</sup>Sr – 15-25 %, <sup>239+240</sup>Pu – 30%.





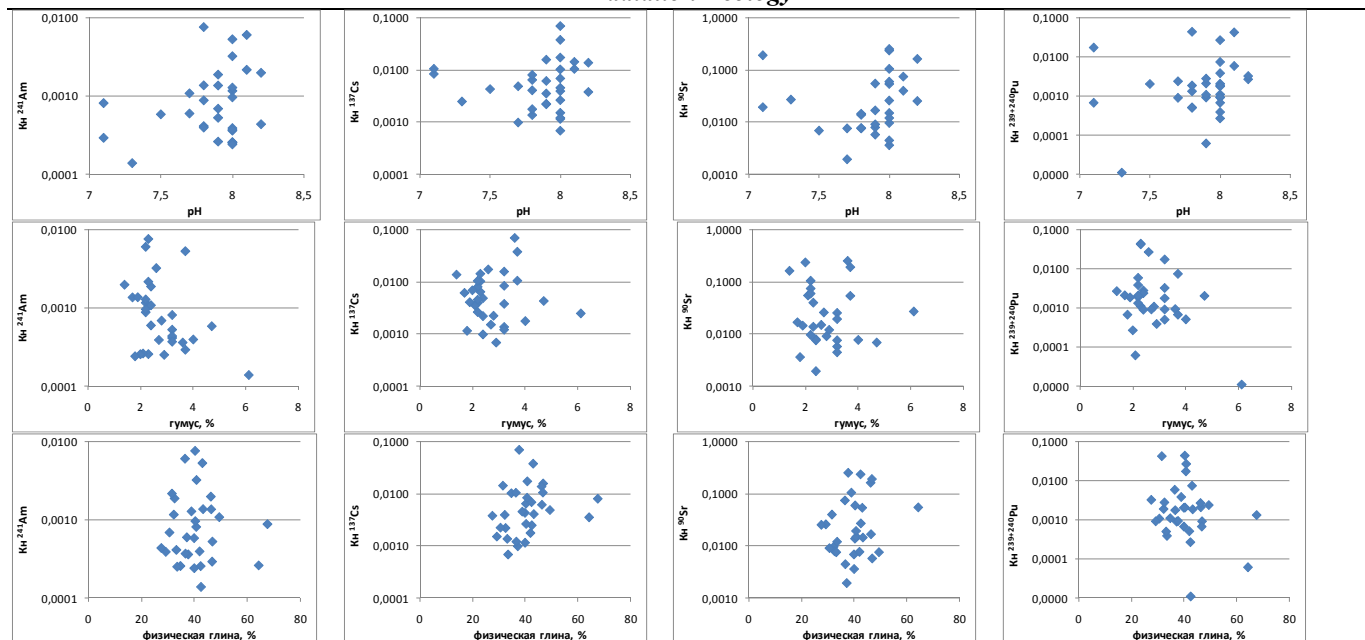


Рисунок 16. Зависимость Кн радионуклидов от некоторых физико-химических свойств светло-каштановых почв

Как показывают представленные графики, влияние рассмотренных физико-химических свойств почв на накопление радионуклидов растениями отсутствует. Причиной этому может служить, как недостаточный диапазон варьирования данных факторов в пределах исследуемой территории, так и отсутствие в почве достаточного количества наиболее доступных форм нахождения радионуклидов

### 2.3 Сравнительный анализ коэффициентов накопления радионуклидов для степных растений с «Опытного поля» с коэффициентами накопления для растений с других участков бывшего Семипалатинского испытательного полигона

Для оценки полученных результатов о накоплении радионуклидов  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  степными растениями проведем их сравнительный анализ с данными полученными ранее для различных растений, отобранных с других территорий СИП. Дополнительно сопоставим полученные данные с обобщенными международными материалами для 2-х групп растений (разнотравье и пастбищные травы), отобранных на суглинистых почвах, характерных и для территории СИП (Таблица 4).

Таблица 4. Диапазоны значений коэффициентов накопления (Кн) радионуклидов для различных растений с территорий СИП

Исследуемые растения	Кн			
	$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{239+240}\text{Pu}$
<b>Исследуемая территория «Опытного поля»</b>				
КОВЫЛЬ ( <i>Stipa capillata</i> )	<u>0,001 (n=32)</u> 0,0001 - 0,01	<u>0,01 (n=32)</u> 0,001-0,1	<u>0,1 (n=30)</u> 0,002-0,3	<u>0,01 (n=32)</u> 0,00001-0,04
<b>Площадка «Дегелен», район иттольни № 176</b>				
ПИЖМА ( <i>Tanacetum vulgare</i> )	-	<u>2,80 (n=10)</u> 0,01 - 16,30	<u>1,80 (n=10)</u> 0,80 - 5,70	-
ШИПОВНИК ( <i>Rosa spinosissima</i> )	-	<u>2,60 (n=10)</u> 0,01 - 13,20	<u>2,00 (n=10)</u> 0,40 - 4,50	-
ВОЛОСНЕЦ ( <i>Leymus angustus</i> )	-	<u>1,30 (n=10)</u> 0,05 - 7,50	<u>3,30 (n=10)</u> 0,90 - 9,50	-
<b>Площадка «Дегелен», район иттольни № 177</b>				
ПИЖМА ( <i>Tanacetum vulgare</i> )	<0,03 (n=10)	<u>0,02 (n=10)</u> 0,002 - 0,06	<u>0,80 (n=11)</u> 0,50 - 1,40	<u>0,01 (n=5)</u> 0,0003 - 0,02
ИВАН-ЧАЙ ( <i>Chamaenerium angustifolium</i> )	<0,13 (n=12)	<u>0,20 (n=12)</u> 0,001 - 1,00	<u>1,30 (n=13)</u> 0,50 - 4,00	<u>0,004 (n=3)</u> 0,001 - 0,003
БОДЯК ( <i>Cirsium arvense</i> )	<0,09 (n=9)	<u>0,10 (n=11)</u> 0,008 - 0,60	<u>2,47 (n=11)</u> 1,80 - 3,20	<u>0,01 (n=2)</u> 0,003 - 0,02
<b>«Фоновые» северные территории СИП</b>				
степное разнотравье	<u>0,06 (n=3)</u> 0,02 - 0,11	<u>0,02 (n=14)</u> 0,003 - 0,06	<0,40 (n=4)	<u>0,03 (n=9)</u> 0,01 - 0,1
<b>«Фоновые» западные территории СИП</b>				
степное разнотравье	<0,20 (n=22)	<u>0,05 (n=12)</u> 0,01 - 0,1	<u>0,8 (n=3)</u> 0,1 - 1,7	<u>0,04 (n=13)</u> 0,002 - 0,2
<b>Международные обобщенные данные (2009)</b>				
разнотравье	-	<u>0,1 (n=10)</u> 0,01 - 0,2	<u>0,9 (n=6)</u> 0,3 - 2,0	-

### *Radiation Ecology*

пастбищные травы	$0,003 (n=11)$ 0,005 – 0,02	$0,4 (n=124)$ 0,01 – 2,6	$1,2 (n=58)$ 0,4 – 2,6	$0,0006 (n=10)$ 0,00006 – 0,003
Примечание: в числителе – среднее арифметическое, в скобках – число случаев, в знаменателе – диапазон значений,				

Как видно из таблицы, несмотря на многочисленные ранее проводимые исследования, впервые для территории СИП получены статистически достоверные количественные значения Кн  $^{241}\text{Am}$ , причем число проанализированных для исследуемой территории случаев в 5 раз превышает все имеющиеся на данный момент международные результаты. Установленные значения Кн радионуклидов  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$  степными растениями на площадке «Опытное поле» смещены в сторону меньших величин, как относительно приведенных количественных и оценочных значений Кн данного радионуклида для других территорий СИП, так и международных обобщенных величин для пастбищных трав. Значения Кн  $^{239+240}\text{Pu}$  на «Опытном поле» также ниже, чем на других территориях СИП, однако в целом совпадают с диапазоном значений Кн по обобщенным международным материалам. Уникальная ситуация наблюдается для  $^{90}\text{Sr}$  – абсолютное большинство значения Кн которого явно смещено в сторону меньших величин относительно всех ранее полученных Кн данного радионуклида.

#### **ВЫВОДЫ**

В результате проведенных исследований установлены количественные параметры накопления радионуклидов для степных растений на площадке «Опытное поле». Диапазон значений Кн  $^{239+240}\text{Pu}$  (0,00001-0,04) составляет 3 порядка, Кн  $^{241}\text{Am}$  (0,0001-0,01),  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  (0,001-0,1) – по 2 порядка.

Значимого влияния рассмотренных физико-химических свойств почв на накопление радионуклидов растениями не выявлено.

Полученные результаты проведенных исследований являются статистически достоверными, при этом значения Кн в целом ниже, чем для других территорий СИП и данных по обобщенным международным материалам.

УДК 577.391:504.064:539.16

### **ОСОБЕННОСТИ НАКОПЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ СЕЛЬСКОХОЗЯЙСТВЕННЫМИ КУЛЬТУРАМИ В РАЙОНЕ ПРОВЕДЕНИЯ НАЗЕМНЫХ ЯДЕРНЫХ ИСПЫТАНИЙ (ПЛ. «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ»)**

Кожуханов Т.Е., Лукашенко С.Н., Паницкий А.В., Ларионова Н.В.

*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Казахстан, г. Курчатов*

*В статье представлены результаты натурного эксперимента с сельскохозяйственными культурами, выращенными на радиоактивно-загрязненной территории площадки "Опытное поле" бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП). В результате работ выявлены особенности накопления и распределения техногенных радионуклидов в морфологических органах исследуемых растений. Получены коэффициенты накопления  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{241}\text{Am}$  для продукции растениеводства, необходимые для прогноза концентраций данных радионуклидов при оценке возможности передачи части территории СИП в хозяйственное пользование.*

#### **Введение**

В условиях проведения масштабных работ, по передаче части земель бывшего СИП в хозяйственное использование не хватает экспериментальных величин необходимых для прогноза возможных концентраций радионуклидов в продукции растениеводства, в случае их получения на исследуемой территории. Исследования, проводимые ранее на территории СИП были связаны с изучением накопления и распределения радионуклидов в дикорастущей растительности, а также с оценкой качества продукции животноводства – отрасли сельского хозяйства, являющейся основной для данного региона. Работ по изучению особенностей накопления техногенных радионуклидов в урожае сельскохозяйственных (с/х) культур в мировой практике достаточно, однако их результаты применимы только в аналогичных почвенно-климатических условиях. Особый интерес представляют радионуклиды  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ , данные по которым встречаются крайне редко даже в обобщенных материалах мировых исследований.

Проведение исследований, направленных на получение прогнозных величин накопления радионуклидов в продукции растениеводства имеет большую практическую значимость для оценки дозовых нагрузок на население, проживающее на территории СИП и прилегающих территориях.

#### **1. постановка и методы исследования**

Исследования проводились на площадке "Опытное поле" расположенной в северо-западной части бывшего СИП. Для проведения исследований на территории испытательного участка П-2 площадки «Опытное поле» был выбран опытно-экспериментальный участок с высоким уровнем содержания в почве техногенных радионуклидов, в особенности трансураниевых радионуклидов  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ .

В качестве экспериментальных растений были выбраны 23 вида с/х культур, относящихся к 6 различным семействам: злаковым, лилейным (посажеными семенами и севком - небольшой луковичкой), тыквенным, пасленовым, капустным и сельдерейным.

Система земледелия включала следующие мероприятия: агротехнические (перекопка почвы, выравнивание поверхностного слоя, удаление сорных растений) и мелиоративные (искусственное орошение привозной чистой водой). Агрохимические приемы ведения земледелия (использование удобрений и других химических веществ, применяемых против болезней и вредителей растений) не применялись, с целью получения данных об особенностях накопления радионуклидов в с/х растениях без влияния данного фактора.

Отбор проб с/х растений производился по мере созревания их основной продукции, с последующим разделением на генеративные и вегетативные органы. Сопряжено с отбором растений производился и отбор почвы.

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Урожайности с/х культур позволяют сделать вывод о том, что на исследуемой территории возможно выращивание картофеля, редиса и моркови (277, 94 и 144 ц/га соответственно) при использовании только искусственного орошения и простых агротехнических приемов. Урожайность фасоли, лука, перца, томата и арбуза – 36 ц/га, 52,5 ц/га, 47 ц/га, 45 ц/га и 15 ц/га соответственно, что в 2-7 раз меньше средних урожайностей для данных культур указанных в литературных источниках. Дыня, баклажан, петрушка в почвенно-климатических условиях исследуемого региона были не урожайными.

### 2.1. СОДЕРЖАНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В СЕЛЬСКОХОЗЯЙСТВЕННЫХ РАСТЕНИЯХ И ПОЧВЕ

В ходе эксперимента были получены удельные активности радионуклидов в исследуемых растениях и почвах, которые представлены в таблице 1.

**Таблица 5.** Удельная активность радионуклидов в растениях (воздушно-сухое состояние) и почвах

С/х культура	Тип пробы	Удельная активность, Бк/кг		
		<sup>241</sup> Am	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr
арбуз	плоды	0,24 ± 0,12	5 ± 0,2	*
	стебли	9,7 ± 0,4	89 ± 1	*
	корни	6,2 ± 1,4	53 ± 3	*
	почва	1000 ± 100	2200 ± 200	2000 ± 500
дыня	плоды	0,8±0,4	4,9±0,7	*
	листья	5,9±0,4	56±2	3050±16
	корни	2,8±0,7	26±2	*
	почва	1100±100	2400±200	2000±400
томат	плоды	0,32 ± 0,11	6 ± 0,4	<1,5
	листья	6,3 ± 0,3	55 ± 1	640±6
	стебли	1,6 ± 0,3	15,3 ± 0,7	1020±8
	корни	34,3 ± 0,7	250 ± 2	700±8
	почва	1400 ± 100	2500 ± 300	2700 ± 500
перец	плоды	0,5 ± 0,2	2,5 ± 0,3	<2,3
	листья	2,4 ± 0,2	26,8 ± 0,5	650±5
	стебли	1,7 ± 0,2	14,9 ± 0,6	1100±10
	корни	1,5 ± 0,4	22 ± 1	390±8
	почва	670 ± 70	1200 ± 100	1700 ± 400
баклажан	плоды	*	*	<5,1
	листья	4,7±0,4	45,6±1,4	950±8
	стебли	0,7±0,2	5±0,4	980±10
	корни	1,8±0,3	16,2±0,7	360±5
	почва	690±70	1100±100	1200±300
капуста	листья	0,85 ± 0,15	12,3 ± 0,5	780±5
	стебли (кочерыги)	3,2 ± 0,5	21,1 ± 1,1	60±2
	корни	13,3 ± 0,4	89,2 ± 1,1	107±3
	почва	1100 ± 100	1500 ± 200	1800±400
петрушка	листья	1,5 ± 0,3	12 ± 1	78±6
	корни	0,7 ± 0,1	6,7 ± 0,4	<3,2
	почва	390 ± 40	540 ± 50	520 ± 230
морковь	листья	0,9 ± 0,2	10,5 ± 0,4	97±3
	корнеплод	0,83 ± 0,08	4,6 ± 0,2	380±5
	почва	530 ± 50	690 ± 70	990±270
лук репчатый (семенами)	листья	20 ± 1	60 ± 2	550±16
	луковицы	7 ± 1	46 ± 3	234±6
	почва	570 ± 60	1100 ± 100	770 ± 280
лук репчатый (севком)	листья	1,7 ± 0,2	14,9 ± 0,6	232±3
	луковицы	2,2 ± 0,5	22 ± 1	1070±13
	почва	1100 ± 100	2000 ± 200	2300±400

**2.2. Изучение характера распределения радионуклидов по генеративным и вегетативным органам сельскохозяйственных растений**

На основании полученных значений удельной активности  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в исследуемых растениях рассчитаны коэффициенты накопления (Кн) данных радионуклидов. Проведена оценка распределения  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  по органам исследуемых растений с учётом принадлежности к тому или иному семейству (Таблицы 2-5).

**Таблица 6.** Кн радионуклидов в органах растений семейства тыквенных и злаковых

С/х культура (тыквенные)	Тип пробы	Кн		С/х культура (злаковые)	Тип пробы	Кн	
		$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$			$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$
арбуз	плоды	0,00025	0,0023	пшеница	зерно	<0,0033	0,0036
	надземная часть*	0,010	0,041		пленка зерна	0,0057	0,0062
	корни	0,0064	0,024		стебли	<0,0061	0,028
дыня	плоды	0,00073	0,0020		корни	0,015	0,099
	надземная часть	0,0054	0,023	ячмень	стебли	0,0028	0,017
	корни	0,0026	0,011		корни	0,017	0,10

Примечание: \* - стебли + листья

Характер распределения данных радионуклидов в органах растений семейства тыквенных схож и представляет следующий убывающий ряд: **надземная часть > подземная часть > плоды**. Общий вид распределения  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в органах растений семейства злаковых: **корни > стебли > пленка зерна > зерно**. Анализ данных показал что в среднем Кн  $^{137}\text{Cs}$  больше Кн  $^{241}\text{Am}$  для растений семейства тыквенных и злаковых в 4 раза и 6 раз соответственно.

**Таблица 7.** Кн радионуклидов в органах растений семейства пасленовых

С/х культура	Тип пробы	Кн		
		$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$
Томат	плоды	0,00023	0,002	<0,00056
	листья	0,0045	0,022	0,24
	стебли	0,0011	0,006	0,38
	корни	0,025	0,1	0,26
Перец	плоды	0,00075	0,0021	<0,0014
	листья	0,0036	0,022	0,38
	стебли	0,0025	0,012	0,65
	корни	0,0022	0,018	0,23
Баклажан	плоды	*	*	<0,0043
	листья	0,0068	0,042	0,80
	стебли	0,0010	0,0046	0,82
	корни	0,0026	0,015	0,30

Примечание: \* - данных нет

Убывающий ряд по накоплению  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в органах растений семейства пасленовых следующий: **листья > стебли ≥ корни > плоды**. Исключение составил томат, где максимум данных радионуклидов отмечен в корнях. Накопление  $^{90}\text{Sr}$  в органах растений семейства пасленовых отличается и имеет следующий убывающий ряд: **стебли > листья ≥ корни > плоды**. Накопление радионуклидов в органах растений семейства пасленовых представлено следующим образом:  $^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs} > ^{241}\text{Am}$ .

**Таблица 8.** Кн радионуклидов в органах растений семейства лилейных и сельдерейных

С/х культура (лилейные)	Тип пробы	Кн			С/х культура (сельдерейные)	Тип пробы	Кн		
		$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$			$^{241}\text{Am}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{90}\text{Sr}$
лук репчатый (семенами)	листья	0,035	0,055	0,71	Морковь	листья	0,0017	0,015	0,098
	луковицы	0,012	0,042	0,30		корнеплоды	0,0016	0,0067	0,38
лук репчатый (севком)	листья	0,0015	0,0075	0,10	Петрушка	листья	0,0039	0,022	0,15
	луковицы	0,0020	0,011	0,46		корни	0,0018	0,012	<0,0062

Распределение  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  в органах растений семейства лилейных зависит от вида посадочного материала: **листья > луковицы (семенами); луковицы > листья (севком)**. Характер распределения  $^{90}\text{Sr}$  в органах растений семейства лилейных: **листья > луковицы (семенами) и луковицы > листья (севком)**, а у растений семейства сельдерейных: **надземная часть > подземная часть (петрушка) и подземная часть > надземная часть (морковь)**. Накопление радионуклидов в органах растений семейства лилейных:  $^{90}\text{Sr} > ^{137}\text{Cs} > ^{241}\text{Am}$ , а у растений семейства сельдерейных:  $^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr} > ^{241}\text{Am}$ . Накопление  $^{90}\text{Sr}$  у растений семейства лилейных происходит интенсивнее  $^{137}\text{Cs}$  в среднем в 18 раз и  $^{241}\text{Am}$  – в 85 раз; а у растений семейства сельдерейных накопление  $^{90}\text{Sr}$  интенсивнее  $^{137}\text{Cs}$  в 23 раза (исключение корни петрушки) и  $^{241}\text{Am}$  в 84 раза.

Таблица 9. Кн радионуклидов в органах растений семейства капустных

С/х культура	Тип пробы	Кн		
		<sup>241</sup> Am	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr
капуста	листья	0,00077	0,0082	0,43
	стебли	0,0029	0,014	0,033
	корни	0,012	0,060	0,059

Распределение <sup>241</sup>Am и <sup>137</sup>Cs в органах растений семейства капустных: **корни > стебли > листья**. Распределение <sup>90</sup>Sr в органах растений семейства капустных: **листья > корни > стебли**. В среднем Кн <sup>90</sup>Sr для растений семейства капустных превышает Кн <sup>137</sup>Cs – в 3 раза и <sup>241</sup>Am – в 191 раз.

### 2.3. Оценка возможности производства растениеводческой продукции в условиях радиоактивного загрязнения на территории СИП

Сравнительная оценка полученных данных удельной активности <sup>241</sup>Am, <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr с допустимой удельной активностью (ДУА в сырой растительной массе) данных радионуклидов в продукции растениеводства показывает, что исследуемые растения по значениям удельной активности не превышают санитарно-гигиенических норм. Используя

$$\text{формулу } ПДС_{\text{почва}} = \frac{ДУА}{Кн}, \text{ где}$$

ПДС<sub>почва</sub> – предельно допустимое содержание исследуемого радионуклида в почве,

ДУА – допустимая удельная активность радионуклидов в растительной продукции (на сырую массу),

Кн – коэффициент накопления исследуемого радионуклида, можно рассчитать допустимое содержание радионуклидов в почве, при котором возможно получение «чистой» с/х продукции.

ПДС некоторых исследуемых радионуклидов в почве представлено в таблице 6.

Таблица 10. Оценочное предельно допустимое содержание радионуклидов в почве

С/х культура	Продукция	ПДС в почве, Бк/кг		
		<sup>241</sup> Am	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr
арбуз	плоды	161700	528000	*
дыня	плоды	61100	653000	*
томат	плоды	117000	333000	480000
перец	плоды	76600	823000	422000
баклажан	плоды	*	*	134000
петрушка	листья	2000	10600	500
капуста	листья	18500	52300	300
морковь	корнеплод	17000	120000	700
лук (семенами)	луковицы	2500	22100	1000
лук (севком)	луковицы	12500	68200	540

Примечание: \* - данных нет

### Выводы

Установлено, что наиболее интенсивно происходит накопление <sup>241</sup>Am и <sup>137</sup>Cs у злаковых, капустных, лилейных (севком), сельдерейных (морковь) и пасленовых (томат) - в подземной части растений, а у сельдерейных (петрушка), тыквенных, пасленовых (перец, баклажан) и лилейных (семенами) - в надземной части растений. Максимальное накопление <sup>90</sup>Sr отмечается в листьях (капуста, петрушка, перец, баклажан и лук (семенами)), Наименьшее накопление исследуемых радионуклидов отмечается в генеративных органах (плодах и зерне). Для всех исследованных растений выявлена следующая закономерность накопления радионуклидов: накопление <sup>90</sup>Sr в среднем интенсивнее <sup>137</sup>Cs на 1-2 порядка и <sup>241</sup>Am – на 2-3 порядка, а накопление <sup>137</sup>Cs происходит интенсивнее <sup>241</sup>Am в 5 раз.

Полученные экспериментальные значения Кн <sup>137</sup>Cs, и <sup>241</sup>Am указывают на возможность получения растениеводческой продукции соответствующей санитарным нормам при высоких уровнях радионуклидного загрязнения почв: <sup>241</sup>Am – 61100 Бк/кг и <sup>90</sup>Sr – 134000 Бк/кг для растений семейства тыквенных и пасленовых. При выращивании с/х культур на территории «Опытного поля» с концентрацией в почве: <sup>241</sup>Am – не более 2000 Бк/кг и <sup>90</sup>Sr – не более 300 Бк/кг основная продукция растений семейства капустных, сельдерейных и лилейных будет соответствовать санитарным нормам.

## ОЦЕНКА КОМПЛЕКСНОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКИХ ФАКТОРОВ НА ФОРМИРОВАНИЕ СТРУКТУРЫ И БИОМАССЫ КСЕРОФИТНЫХ СООБЩЕСТВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА

Плисак Р.П., Плисак С.В.

Институт ботаники и фитоинтродукции МОН Республики Казахстан, г. Алматы

Угнетающее влияние излучений на биогеоценозы в сочетании с действием других факторов внешней среды приводит к нарушению структуры сообществ, изменению видового состава и количества видов, степени проективного покрытия и ярусности, направления и скорости сукцессий, фенологическим сдвигам, выпадению некоторых радиочувствительных видов. Экологическую нишу, освобождаемую исчезающим радиочувствительным видом, занимают другие радиорезистентные виды. При повреждении или исчезновении одного яруса в растительном сообществе изменяются условия существования других ярусов [1,2,3].

Рассматриваемая территория расположена в пределах сухих дерновиннозлаковых степей на каштановых почвах и опустыненных полынноковыльных степей на светлокаштановых почвах. Особенностью растительного покрова подзоны сухих дерновиннозлаковых степей является господство ксерофитных дерновинных злаков (*Stipa*, *Festuca valesiaca*, *Koeleria cristata*). Участие разнотравья незначительно или оно полностью выпадает из травостоя. Представителями разнотравья данной подзоны являются *Dianthus rigidus*, *Salvia stepposa*, *Potentilla acaulis*. Для низких мелкосопочников характерны караганово-полынно-тырсиковые (*Stipa sareptana*+*Artemisia frigida*+*Caragana pumila*) петрофитные степи. В высоких мелкосопочниках широко распространены сообщества *Stipa rubens*, *Stipa capillata* и *Helictotrichon desertorum*. В низкогорьях формируются сообщества, сложенные дерновинными злаками (*Helictotrichon desertorum* и *Stipa kirghisorum*), кустарниками (*Caragana pumila*, *Spiraea hypericifolia*) и петрофитным разнотравьем (*Onosma simplicissima*, *Hedysarum gmelinii*, *Ajania fruticosa*). Для скалистых гор характерны сообщества, сложенные многими видами кустарников (*Spiraea trilobata*, *Juniperus Sabina*, *Berberis sibirica*, *Lonicera microphylla*, *Cotoneaster olyganthus*), полыни (*Artemisia frigida*, *A. marschalliana*, *A. obtusiloba*), разнотравья (*Dianthus rigidus*, *Orostachys spinosa*, *Sedum hybridum*, *Veronica pinnata*, *V. incana*) и дерновинных злаков (*Helictotrichon desertorum*, *Festuca valesiaca*, *Stipa capillata*).

В подзоне опустыненных полынно-ковыльных степей господствуют фитоценозы, сложенные дерновинным злаком (*Stipa sareptana*) и полукустарничком (*Artemisia frigida*) с участием кустарничка (*Caragana pumila*). Они формируются в комплексе с сообществами *Camphorosma monspeliaca*, *Atriplex salsa* на солонцах. По межсопочным понижениям и окраинам озер формируются сообщества солонцово-солончакового типа: ломкоколосниковые (*Psathyrostachys juncea*), чингилловые (*Achnatherum splendens*), селитрянковые (*Nitraria sibirica*), сарсазановые (*Halocnemum strobilaceum*), поташниковые (*Kalidium foliatum*).

В поймах небольших рек формируются мезофитные злаково-разнотравные сообщества, сложенные *Elytrigia repens*, *Calamagrostis epigeios*, *Phragmites australis*, *Poa angustifolia*, *Inula britannica*, *Sanguisorba officinalis*, *Glycyrrhiza uralensis*, *Galatella biflora*, *G. angustissima* и др. В сложении этих сообществ иногда принимают участие деревья и кустарники *Populus tremula*, *P. nigra*, *Salix viminalis*, *S. pentandra*, *S. cinerea*, *S. rosmarinifolia*, *Rosa laxa*, *R. majalis*, *R. acicularis*, *R. spinosissima*. Для надпойменных террас характерны сообщества сложенные *Puccinellia dolicholepis*, *Aeluropus litoralis*, *Leymus angustus*, *Achnatherum splendens*.

Объект исследований полынно-ксерофитнозлаковые (*Stipa sareptana* + *Artemisia sublessingiana* + *A. marschalliana*) сообщества. Они формируются при мощности экспозиционной дозы  $\gamma$ -излучения 150-170 мкр/час (на контроле – 9-10 мкр/час). Почвы характеризуются непромывным типом водного режима, незначительным содержанием (до 2,5 %) гумуса в поверхностном горизонте, слабощелочной реакцией почвенного раствора (pH – 7,1-7,6) в верхних горизонтах, усилением её до щелочной – в нижних горизонтах, преобладанием суглинистых разновидностей в механическом составе, достаточной обеспеченностью катионами магния и кальция. На загрязнённом участке при дезактивационных работах был частично удалён верхний слой почв. В результате этого гумусовый горизонт уменьшился до 27 см (на контроле – 32 см).

Во флористическом составе исследуемых сообществ на загрязнённом и контрольном участках различия небольшие. О значительном антропогенном прессе на растительность загрязнённого участка свидетельствует присутствие низкого мезоксерофитного однолетника *Ceratocarpus arenarius*. На загрязнённом участке количество видов растений меньше: после ядерных взрывов видовое разнообразие ещё не восстановилось до исходного состояния.

В фенологическом развитии растений на загрязнённом участке по сравнению с контролем выявлено некоторое опережение наступления генеративных фаз у доминирующих видов *Artemisia marschalliana*, *A. sublessingiana* и *Stipa sareptana*.

В жизненном состоянии растений выявлены незначительные различия: на загрязнённом участке развитие *Artemisia sublessingiana*, *Festuca valesiaca* и *Carex supina* было удовлетворительным, на контроле – хорошим.

На загрязнённом участке усиливается пространственная неоднородность горизонтальной структуры сообщества. Это обусловлено значительной антропогенной нарушенностью экосистемы. На формирование вертикальной структуры сообщества радиационное загрязнение заметного влияния не оказывает.

Общее проективное покрытие в данном сообществе на загрязнённом участке составляло 60-75% (на контроле – 85-100%). Покрытие почвы растениями на загрязнённом участке достигало 50-65% (на контроле – 65-70%).

Напочвенный покров на загрязнённом участке достигал 5-15% (на контроле – 10-20%). Более низкое проективное покрытие на загрязнённом участке обусловлено тем, что это сообщество является серийным и представляет собой одну из последних стадий восстановления опустыненных степей после наземных ядерных взрывов.

Количество особей доминирующих растений на 1 м<sup>2</sup> на загрязнённом участке у *Stipa sareptana* достигало 5-10 (на контроле – 4-8), у *Artemisia sublessingiana* – 3-6 (на контроле – 4-7).

Высота одного доминирующего растения на загрязнённом участке у *Stipa sareptana* достигала 35-83 см (на контроле – 20-54 см), у *Artemisia sublessingiana* – 15-65 см (на контроле – 20-58 см).

Средний вес одной особи *Stipa sareptana* на загрязнённом участке составлял 8,0-11,1 г (на контроле – 4,6-6,5 г). Средний вес одной особи *Artemisia sublessingiana* на загрязнённом участке достигал 15,1-20,3 г (на контроле – 15,6-21,0 г).

Величина надземной биомассы в данном сообществе на загрязнённом участке достигала 104,2-157,1 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 86,1-113,6 г/м<sup>2</sup>). Средний вес опада с 1 м<sup>2</sup> на загрязнённом участке составлял 91,9-94,9 г (на контроле – 76,0 – 81,0 г). Вес однодольных растений (*Stipa sareptana*, *Festuca valesiaca*, *Koeleria cristata*, *Cleistogenes squarrosa*) на загрязнённом участке достигал 70,1-115,3 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 47,0-65,2 г/м<sup>2</sup>). Вес двудольных растений (*Artemisia sublessingiana*, *A. marschalliana*, *A. austriaca*, *Ceratocarpus arenaries*, *Ancathia igniaria*) на загрязнённом участке составлял 34,1-41,8 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 39,1-48,4 г/м<sup>2</sup>).

На загрязнённом участке глубина проникновения корней доминирующих растений достигает 70-100 см (на контроле – 61-64 см). Наиболее насыщен корнями растений слой почвы глубиной 0-28 см (на контроле – 0-30 см). Вес подземных органов доминирующих растений на загрязнённом участке у *Stipa sareptana* составлял в слое почвы 0-10 см – 16,8-21,5 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 16,0-16,4 г/м<sup>2</sup>), в слое почвы 10-30 см – 5,6-27,6 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 8,0-22,4 г/м<sup>2</sup>). Вес подземных органов у *Artemisia sublessingiana* на загрязнённом участке в слое почвы 0-10 см достигал 126,4-136 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 88,4 – 100 г/м<sup>2</sup>), в слое 10-30 см – 27,6-32,0 г/м<sup>2</sup> (на контроле – 22,4-24,0 г/м<sup>2</sup>). Средний вес корня одной особи *Stipa sareptana* на загрязнённом участке достигал 2,5-3,0 г (на контроле – 2,6-2,9 г). Средний вес корня одной особи *Artemisia sublessingiana* на загрязнённом участке составлял 24,4-28,0 г (на контроле – 17,9-22,5 г).

На загрязнённом участке выявлены растения-гераты. У многих особей *Spiraea hypericifolia* образуются укороченные ветви и не формируются генеративные органы. У некоторых особей *Artemisia marschalliana* укорочены стебли и деформированы метёлки. Они превратились в уплотнённые шаровидные образования (с диаметром 1,0-1,5 см). У отдельных особей *Phlomis tuberosa* формируются перекрученные стебли. В деформированных мутовках в 3-4 раза меньше цветков, чем на контрольном участке. У многих особей не формируются генеративные органы.

В рассматриваемом биогеоценозе почвы загрязнены техногенными радионуклидами в верхних горизонтах. В слое 0-2(3) см Am<sup>241</sup> аккумулируется 4959-12386 Бк/кг, в слое 2(3)-12(13) см – 54-173 Бк/кг, а в слое 12(14)-24(25) см – 11-3 Бк/кг (на контроле в слое 0-9 см – 6-13 Бк/кг). Cs<sup>137</sup> аккумулируется в слое 0-2(3) см 525-819 Бк/кг, в слое 2(3)-12(13) см – 43-218 Бк/кг, в слое 12(13)-24(25) см – 7,2-19 Бк/кг (на контроле в слое 0-9 см – 29-53 Бк/кг). Eu<sup>152,154</sup> накапливается в слое 0-2(3) см – 1776-1957 Бк/кг, в слое 2(3)-12(13) см – 43-218 Бк/кг, в слое 12(13)-24(25) см – 7,2-19 Бк/кг. Содержание интегральной α-активности в слое 0-2 см достигает – 3060 Бк/кг, в слое 2-12 см – 1850 Бк/кг, в слое 12-25 см – 1440 Бк/кг (на контроле в слое 0-9 см – 780 Бк/кг). Содержание интегральной β-активности в слое 0-2 см составляло 2350 Бк/кг, в слое 2-12 см – 1430 Бк/кг, в слое 12-25 см – 780 Бк/кг (на контроле в слое 0-9 см – 700 Бк/кг).

Анализ полученных результатов исследований миграции техногенных радионуклидов в зональных биогеоценозах выявил следующее:

- 1) содержание техногенных долгоживущих радионуклидов Am<sup>241</sup>, Cs<sup>137</sup>, Eu<sup>152,154</sup> в почвах выше, чем корнях и надземной части доминирующих растений *Stipa sareptana* и *Artemisia sublessingiana*. Аккумуляция этих радионуклидов происходит в основном в верхнем слое почвы 0-2(3) см. Наиболее насыщен корнями растений слой почвы 0-28(30) см;
- 2) в корнях *Stipa sareptana* и *Artemisia sublessingiana* Am<sup>241</sup>, Cs<sup>137</sup>, Eu<sup>152,154</sup> накапливается больше, чем в надземной части;
- 3) содержание интегральной α-активности в корнях *Stipa sareptana* меньше, чем в почве;
- 4) содержание интегральной α-активности в надземной части *Stipa sareptana* меньше, чем в корнях и почве;
- 5) содержание интегральной α-активности в надземной части *Artemisia sublessingiana* меньше, чем в почве;
- 6) содержание интегральной β-активности в корнях и надземной части *Stipa sareptana* меньше, чем в почве;
- 7) содержание интегральной β-активности в надземной части и корнях *Stipa sareptana* примерно одинаково;
- 8) содержание интегральной β-активности в корнях и надземной части *Artemisia sublessingiana* выше, чем в почве;
- 9) содержание интегральной β-активности в надземной части *Artemisia sublessingiana* выше, чем в корнях.

Таким образом, в данной экосистеме только доминирующее растение *Artemisia sublessingiana* аккумулирует в надземной части α-излучателей больше, чем в корнях и почве. Это гипераккумулятор интегральной α-активности.

В золе корней доминирующего растения *Stipa sareptana* содержится Am<sup>241</sup> 255-900 Бк/кг (на контроле 10-53 Бк/кг). В золе надземной части этого растения Am<sup>241</sup> содержится 37-38 Бк/кг (на контроле <8 Бк/кг). В золе корней *Stipa sareptana* Cs<sup>137</sup> содержится 542-870 Бк/кг (на контроле – 109-114 Бк/кг), в золе надземной части растения – 30-57 Бк/кг (на контроле – 26-33 Бк/кг). Eu<sup>152,154</sup> в золе корней *Stipa sareptana* содержится 1225-1900 Бк/кг (на контроле <4 Бк/кг), в золе надземной части этого растения – 158-182 Бк/кг (на контроле <13 Бк/кг). Содержание интегральной α-активности в золе корней *Stipa sareptana* колеблется от 4180 до 6200 Бк/кг (на контроле – от <900 до 390 Бк/кг), в золе надземной части этого растения содержится <800 Бк/кг (на контроле - <900 Бк/кг). Содержание интегральной β-активности в золе корней *Stipa sareptana* достигает 2840-4300 Бк/кг (на контроле – 1090-1320 Бк/кг), в золе надземной части – 3460-4500 Бк/кг (на контроле – 2530-4300 Бк/кг).



В золе корней доминирующего вида *Artemisia sublessingiana*  $Am^{241}$  содержится 59-276 Бк/кг (на контроле <11 Бк/кг), в золе надземной части растения – 15-43 Бк/кг (на контроле <10 Бк/кг).  $Cs^{137}$  в золе корней этого растения содержится 130-220 Бк/кг (на контроле 56-113 Бк/кг), в золе надземной части – 35-56 Бк/кг (на контроле 16-32 Бк/кг).  $Eu^{152,154}$  в золе корней *Artemisia sublessingiana* содержится 384-542 Бк/кг (на контроле <15 Бк/кг), в золе надземной части растения 99-116 Бк/кг (на контроле <8 Бк/кг).

Содержание интегральной  $\alpha$ -активности в золе корней *Artemisia marschalliana* колеблется от 1020 до 6900 Бк/кг (на контроле – от <900 до 1230 Бк/кг), в золе надземной части – от <800 до 1240 Бк/кг (на контроле <1100 Бк/кг). Содержание интегральной  $\beta$ -активности в золе корней этого растения достигает 6580-7800 Бк/кг (на контроле 1700-3620 Бк/кг), в золе надземной части – 9100-9300 Бк/кг (на контроле – 5400-8200 Бк/кг).

В опаде *Stipa sareptana* и *Artemisia sublessingiana* содержится  $Am^{241}$  250-376 Бк/кг (на контроле – 7,8-10 Бк/кг),  $Cs^{137}$  – 170-510 Бк/кг (на контроле – 82-93 Бк/кг),  $Eu^{152,154}$  – 900-1521 Бк/кг (на контроле <8 Бк/кг). Содержание интегральной  $\alpha$ -активности в опаде *Stipa sareptana* и *Artemisia sublessingiana* достигает 1100-1840 Бк/кг (на контроле <1000-2160 Бк/кг). Содержание интегральной  $\beta$ -активности составляет 3600-4010 Бк/кг (на контроле – 1860-2420 Бк/кг).

В наиболее насыщенном корнями растений слое почв 0-20 (25) см аккумулируются  $Am^{241}$  до 12451 Бк/кг,  $Eu^{152,154}$  – до 4479 Бк/кг,  $Cs^{137}$  – до 1056 Бк/кг, интегральных  $\alpha$ -излучателей – до 6350 Бк/кг, 10-13 частиц/см<sup>2</sup>/мин., интегральных  $\beta$ -излучателей – до 4560 Бк/кг, 4-5 частиц/см<sup>2</sup>/мин. МЭД по  $\gamma$ -излучению достигает 150-170 мкр/час.

В сложившихся радиэкологических условиях, в формировании ксерофитных сообществ на светлокаштановых почвах загрязнённых участков по сравнению с контрольными выявлены следующие изменения:

- 1) количество видов растений уменьшилось, так как после ядерных взрывов видовое разнообразие ещё не восстановилось до исходного состояния;
- 2) произошел фенологический сдвиг в наступлении генеративных фаз у доминирующих видов: опережение наступления фаз бутонизации и цветения у *Artemisia marschalliana*, *A. sublessingiana* и *Stipa sareptana* на 3-4 дня;
- 3) выявлено угнетение роста и развития многих особей *Artemisia sublessingiana*, *Festuca valesiaca* и *Carex supina*;
- 4) произошло усиление гетерогенности горизонтальной структуры сообществ вследствие антропогенной нарушенности поверхностного слоя почв;
- 5) уменьшилась степень общего проективного покрытия, покрытия почвы растениями и напочвенного покрова, обусловленного тем, что на нарушенных участках растительность представлена серийными сообществами, которые представляют собой одну из последних стадий восстановления опустыненных степей после наземных ядерных взрывов;
- 6) произошла стимуляция роста у доминирующего вида (*Stipa sareptana*), увеличение среднего веса одной особи этого растения в 1,1-2 раза, увеличение веса однодольных растений – в 1,1-1,2 раза, мортмассы - в 1,1-1,2 раза и надземной биомассы – в 1,2-1,3 раза.
- 7) отмечено увеличение глубины проникновения корней доминирующих видов *Stipa sareptana*, *Artemisia sublessingiana* и *A. marschalliana* на 9-36 см и среднего веса корня одной особи *A. sublessingiana* в 1,2-1,4 раза и биомассы подземных органов в 1,1-1,4 раза;
- 8) выявлено формирование у отдельных особей некоторых видов растений адаптационных признаков: образование укороченных побегов и отсутствие генеративных органов у *Spiraea hypericifolia*, укороченных стеблей и деформированных метелок у *Artemisia marschalliana*, деформированных стеблей и соцветий у *Phlomis tuberosa*.

#### Литература

1. Тимофеев-Ресовский Н.В. Краткая характеристика теории эволюции. М.//Наука, 1969, 407с.
2. Vakulovsky S. и др. Formation of the system for monitoring contamination water bodies in Belorussia, Russia, Ukraine after the Chernobyl nuclear power plant accident and the result obtained for  $Cs^{137}$  and  $Sr^{90}$  contamination of natural water. Hydrological impact of nuclear Power plant systems; Workshop UNESCO-CECLAEA-UNEP, Paris, Sept. 23-25, 1992, 27pp.
3. Demchuk V. и др. Migration and transformation radionuclides in soil water system in near zone NPP. Proceedings of the International Symposium on Radioecology, Inaima, Oct., 1992, p.14.

УДК 502.3:621.039.7(470.54/.55)

### ОЦЕНКА РИСКА ВОЗДУШНОГО ПЕРЕНОСА ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ С ПРЕДПРИЯТИЙ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА ЧЕЛЯБИНСКОЙ ОБЛАСТИ НА ТЕРРИТОРИЮ СВЕРДЛОВСКОЙ ОБЛАСТИ

В. Коржавин, А.В. Трапезников, В.Н. Трапезникова, В.Г. Лисовских, В.Н. Николкин  
Институт экологии растений и животных УрО РАН

620144, Россия, г. Екатеринбург, ул. 8 Марта 202, тел.: 8 (34377) 3-20-70; E-mail: BFS\_zar@mail.ru.

Радиэкологическая обстановка в Свердловской области, как и в целом в Уральском регионе, неразрывно связана с деятельностью Производственного объединения «Маяк». За период деятельности ПО «Маяк» произошло несколько крупных техногенных катастроф, сопровождающихся поступлением радиоактивных веществ в

окружающую среду и загрязнением обширных территорий. Наиболее значимой для Свердловской области является авария 1957 года, когда в результате взрыва емкости для хранения нитроацетатных солей в окружающую среду было выброшено около 740 ПБк радиоактивных веществ, из которых 74 ПБк были рассеяны ветром в северо-восточном направлении, обусловив радиоактивное загрязнение северной части Челябинской, южной части Свердловской и небольшой территории Тюменской областей. Названная Восточно-Уральским радиоактивным следом (ВУРС), эта территория в границах минимально детектируемых уровней радиоактивного загрязнения – 3,7 ГБк стронция – 90 на квадратный километр имела площадь около 20 тыс. км<sup>2</sup>. [3].

В первые годы существования ПО «Маяк» из-за несовершенства используемого газоочистного оборудования существенный дополнительный вклад в облучение населения южной части Свердловской области, проживающего на территории ВУРСа, внесли газоаэрозольные выбросы радионуклидов в атмосферу [4].

Радиационное воздействие на население в результате выбросов радионуклидов в атмосферу прослеживалось на расстоянии до 60—70 км от ПО «Маяк». Со временем мощность выбросов в атмосферу существенно снизилась в сотни и тысячи раз благодаря повышению эффективности систем газоочистки и усовершенствованию технологии. По данным ПО «Маяк» в настоящее время выбросы радионуклидов в атмосферу из труб предприятия в штатном режиме не оказывают заметного влияния на формирование радиационной обстановки и облучение населения. Вклад текущих выбросов в облучение жителей Озёрска в настоящее время не превышает 0,5% [1].

Таким образом, в настоящее время принято считать, что выбросы радионуклидов в атмосферу из труб предприятия при работе в штатном режиме не оказывают заметного влияния на формирование радиационной обстановки и облучение населения. И все же интерес к этой проблеме остается, и, прежде всего, возможен ли трансграничный воздушный перенос радионуклидов на территорию расположенной рядом Свердловской области при работе предприятия в штатном режиме. Кроме аэрозольных выбросов из труб возможен перенос радионуклидов в результате ветрового подъема с ранее загрязненных территорий. И, наконец, нельзя полностью исключить возможность возникновения каких-либо нештатных ситуаций, в результате которых выбросы радионуклидов в атмосферу могут значительно увеличиться.

Для решения поставленной задачи на территории Свердловской области в северо-восточном направлении от ПО «Маяк» были выбраны реперные участки контроля, расположенные вдоль южной границы области. Их названия соответствуют населенным пунктам, вблизи которых они расположены (Рис. 1). Координаты точек на местности определяли при помощи спутниковой навигационной системы GPS (Табл. 1).

Для определения фоновых значений содержания радионуклидов в исследуемых объектах предложена «контрольная точка», которая расположена за зоной предполагаемого влияния ПО «Маяк» (Рис.2).

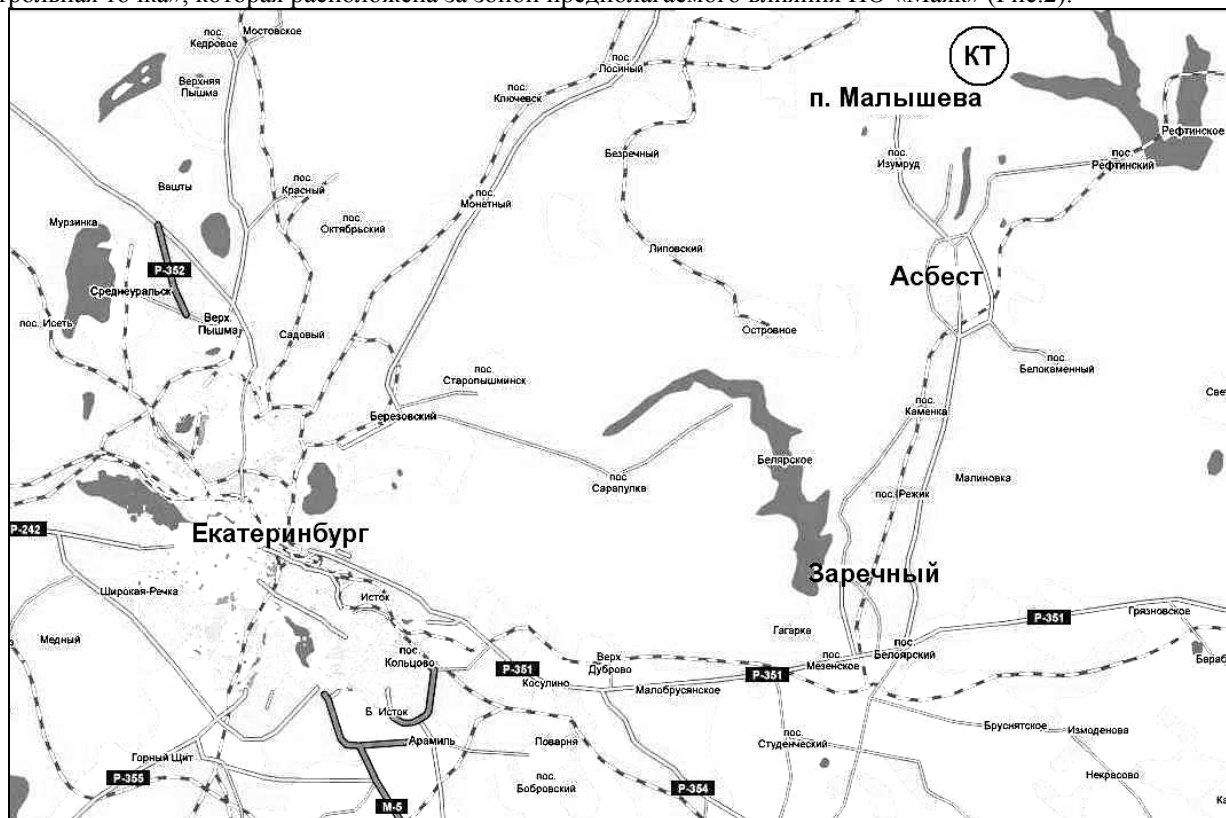


Рисунок 1. Расположение участков контроля на территории Свердловской области.

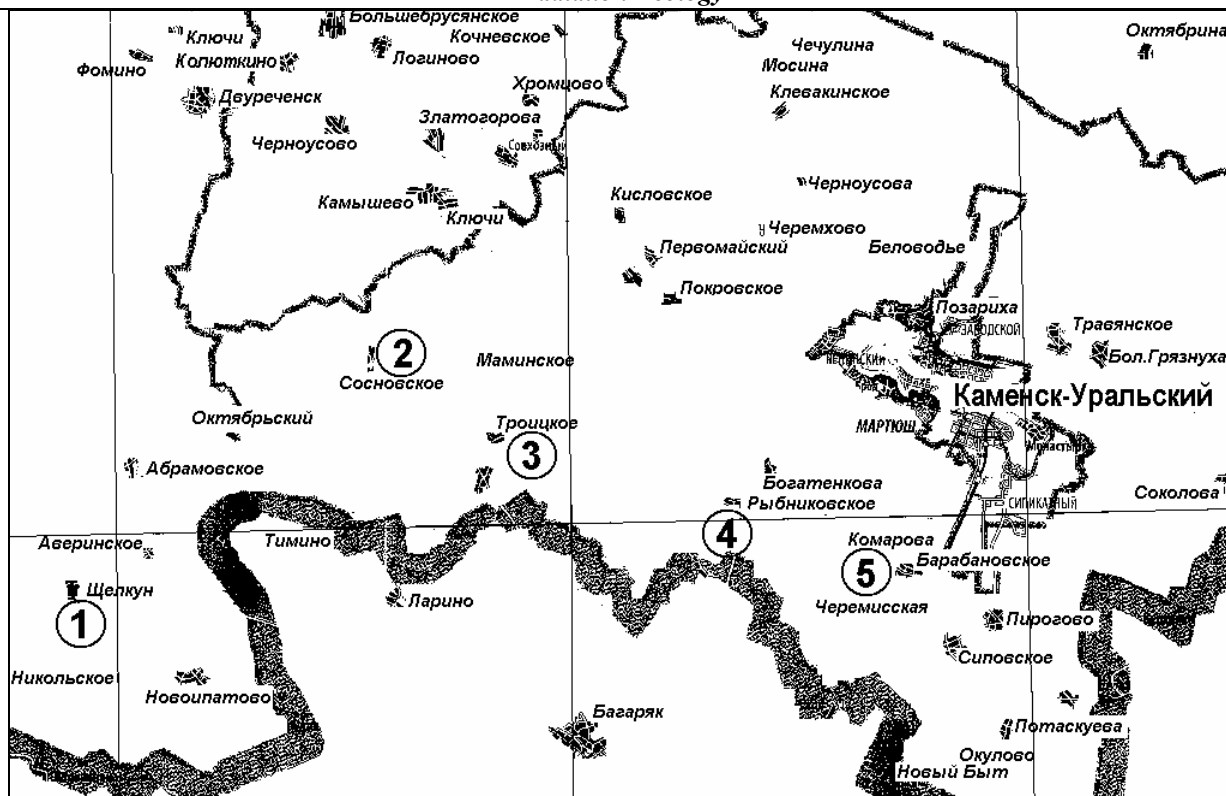


Рисунок 2. Расположение контрольной точки (КТ).

Таблица 1. Географические координаты мест отбора проб.

№ п/п	Место отбора проб	Географические координаты
1	Д. Комарова, Каменский район, пруд	N 56°18,762' E 61°47,748'
2	С. Щелкун, Сысертский район, оз. Щелкунское	N 56°16,638' E 60°55,492'
3	С. Сосновское, Каменский район, оз. Сосновское	N 56°26,715' E 61°15,111'
4	С. Троицкое, Каменский район, оз. Карасье	N 56°23,161' E 61°25,682'
5	Д. Рыбниково, Каменский район, оз. Червяное	N 56°20,350' E 61°39,437'
6	Пос. Малышева, Рефтинский пруд (контрольная точка)	N 57°05,657' E 61°29,400'

На каждом выбранном участке расположен непроточный или слабопроточный водоем (озеро или искусственный водоем). Предлагаемая модель радиозоологического мониторинга включает в себя определение содержания долгоживущих дозообразующих радионуклидов: стронция - 90, цезия - 137 и плутония - 239, 240 в объектах окружающей среды, которые играют роль природных планшетов. К таким объектам можно отнести снежный покров, верхний 0-15 см слой почвы и воду открытых водоемов. Снежный покров аккумулирует газоаэрозольные выпадения предприятий ЯТЦ в осенне-зимний период, а почвенный - даёт интегральную их характеристику. Водная поверхность открытых водоемов собирает атмосферные выпадения радионуклидов в течение всего года, а также с территории водосбора после таяния снега и с дождевыми водами, которые в дальнейшем аккумулируются в донных отложениях водоемов.

Данная схема окончательно сформировалась к 2007 году и была утверждена Министром природных ресурсов Свердловской области как «Концептуальная модель мониторинга на пути трансграничного воздушного переноса на территорию Свердловской области с объектов ядерного топливного цикла, расположенных в Челябинской области».

### 1. Объекты, методы исследования и используемое оборудование

Отбор проб снега проводился в конце зимнего снегостояния (март - начало апреля) с участков размером 3×3 или 4×4 м в зависимости от глубины снежного покрова по две повторности в каждом реперном участке. Снег собирали в большие полиэтиленовые мешки, маркировали, перевозили на Биофизическую станцию Института экологии растений и животных УрО РАН, где снег растапливали, талую воду сливали в алюминиевые флаги и сразу подкисляли

соляной кислотой для предотвращения сорбции на стенках сосудов. Для получения достоверных результатов содержания радионуклидов в снежном покрове необходимо большое количество исходного материала, поэтому объём талой воды, полученной из одной пробы снега, составлял от 913 до 1125 литров в зависимости от толщины снежного покрова.

Талую воду отфильтровывали через ватные фильтры от механических примесей и выпаривали в специальных котлах до получения концентрата объёмом 1-2 литра, который также выпаривали в химической посуде до сухого остатка. Сухой остаток доводили до постоянного веса при температуре 450-500°C и проводили измерения гамма-, бета- и альфа- активности присутствующих радионуклидов.

Пробы воды из водоемов отбирали в алюминиевые фляги и также подкисляли соляной кислотой. Для получения объективных результатов все пробы воды отбирали в двух повторностях по 110-120 литров в каждой. В лабораторных условиях пробы выпаривали до сухого остатка.

Отбор почвенных проб проводили по углам равностороннего треугольника с длиной стороны 10 м. В этом случае усредненная (из 3-х) проба представительно характеризует площадь 0,01 км<sup>2</sup>. Эта методика была успешно использована на протяжении ряда лет при радиоэкологическом обследовании загрязненных территорий Уральского региона и опубликована в работе [2].

Пробы грунтов отбирали из полнопрофильных разрезов. После заглубления разреза на необходимую глубину, один край выравнивали и из него послойно отбирали пробы в виде рамки 20×20 см, последовательно снимая слои по 5 см до глубины 30-35 см в зависимости от характера грунта. Пробы маркировали и упаковывали в двойные полиэтиленовые пакеты для временного хранения и транспортировки. В лабораторных условиях пробы высушивали, взвешивали, перемалывали на шаровой мельнице и просеивали через сито с ячейкой 1 мм.

Измерение активности <sup>137</sup>Cs проводили на гамма-спектрометре фирмы "Canberra Packard" (Model S400 Genie-PC Spectroscopy System, США) с германиевым детектором коаксиального типа с рабочим объёмом кристалла 117 см<sup>3</sup> и энергетическим разрешением 1,77 КэВ по гамма-линии радионуклида <sup>137</sup>Cs - 661,2 КэВ, помещенным в штатную свинцовую защиту и охлаждаемым с помощью криостата с жидким азотом. Программное обеспечение OS ½ при ошибке измерения не более 5-15%.

Содержание <sup>90</sup>Sr в снеге определяли непосредственно в образцах сухого остатка или на оксалатных концентратах после радиохимического выделения суммарного осадка оксалатов стронция и кальция. Измерения бета - активности проводили на гамма - бета спектрометре со сцинтилляционным детектором с программным обеспечением «Прогресс» или на малофоновой установке УМФ-2000. Пределы обнаружения <sup>137</sup>Cs в природных объектах с учетом методов подготовки проб составляли: 1 Бк/кг в почвах и 0,1 Бк/м<sup>3</sup> в воде, <sup>90</sup>Sr – соответственно – 0,6 Бк/кг и 5 Бк/м<sup>3</sup>.

Для определения содержания изотопов плутония в пробах почвы и воды использовали модифицированную методику, разработанную сотрудниками RISØ National Laboratory (Дания) [5]. Она включает в себя: выщелачивание образца смесью кислот; 2-х кратную очистку раствора на ионообменной колонке; электролитическое осаждение и альфа- спектрометрию полученных образцов. Определение изотопного состава полученного образца проводили на спектрометре типа «Alpha Analyst» (США) с полупроводниковыми детекторами (PIPS) и программным обеспечением GENIE-2000. Ошибка счета не превышала 15%, а нижний предел определения составлял 0,1 Бк/кг.

## **2. Результаты исследования, их анализ и обсуждение**

### **2.1. Содержание радионуклидов в снежном покрове**

По соотношению плотности загрязнения снежного покрова реперных участков и контрольной точки можно сказать, что присутствие <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr на всех обследованных участках в основном обусловлено глобальными выпадениями. При этом имеет место определенная ежегодная вариабельность в виде всплесков и понижений на отдельных участках, которые, по всей видимости, связаны с рядом атмосферных явлений и неравномерным выпадением осадков на обследованной территории.

Несколько иная картина наблюдается при анализе плотности загрязнения снежного покрова <sup>239,240</sup>Pu (Рис. 3). В 2008 году в снежном покрове реперных участков Сосновское и Рыбниковское было отмечено увеличение содержания данного радионуклида. Так, на участке в районе с. Сосновское плотность загрязнения снежного покрова <sup>239,240</sup>Pu по сравнению с предыдущим годом увеличилась в 8,8 раза, а по отношению к показателю 2006 года – в 38 раз. В снежном покрове участка с. Рыбниковское содержание <sup>239,240</sup>Pu в 2008 году возросло в 68 раз, и было в 27 раз выше по сравнению с контрольной точкой. На протяжении последних трех лет в районе с. Рыбниковское плотность загрязнения снежного покрова <sup>239,240</sup>Pu была выше, чем в контрольной точке. В 2009 и 2010 гг. было отмечено последовательное увеличение содержания <sup>239,240</sup>Pu в снежном покрове на участке д. Комарова. Так же в 2010 г. наблюдается некоторое увеличение содержания данного радионуклида на реперных участках в районе н.п. Щелкун и Троицкое.

При этом следует отметить, что в количественном отношении ежегодные колебания содержания <sup>239,240</sup>Pu в снежном покрове очень незначительны, поэтому, в данном случае так же весьма важна динамика его изменения на протяжении ряда лет. Устойчивое превышение на протяжении нескольких лет над показателями контрольной точки может свидетельствовать о наличии определенной закономерности и присутствии дополнительных атмосферных выпадений, отличающихся от глобального уровня.

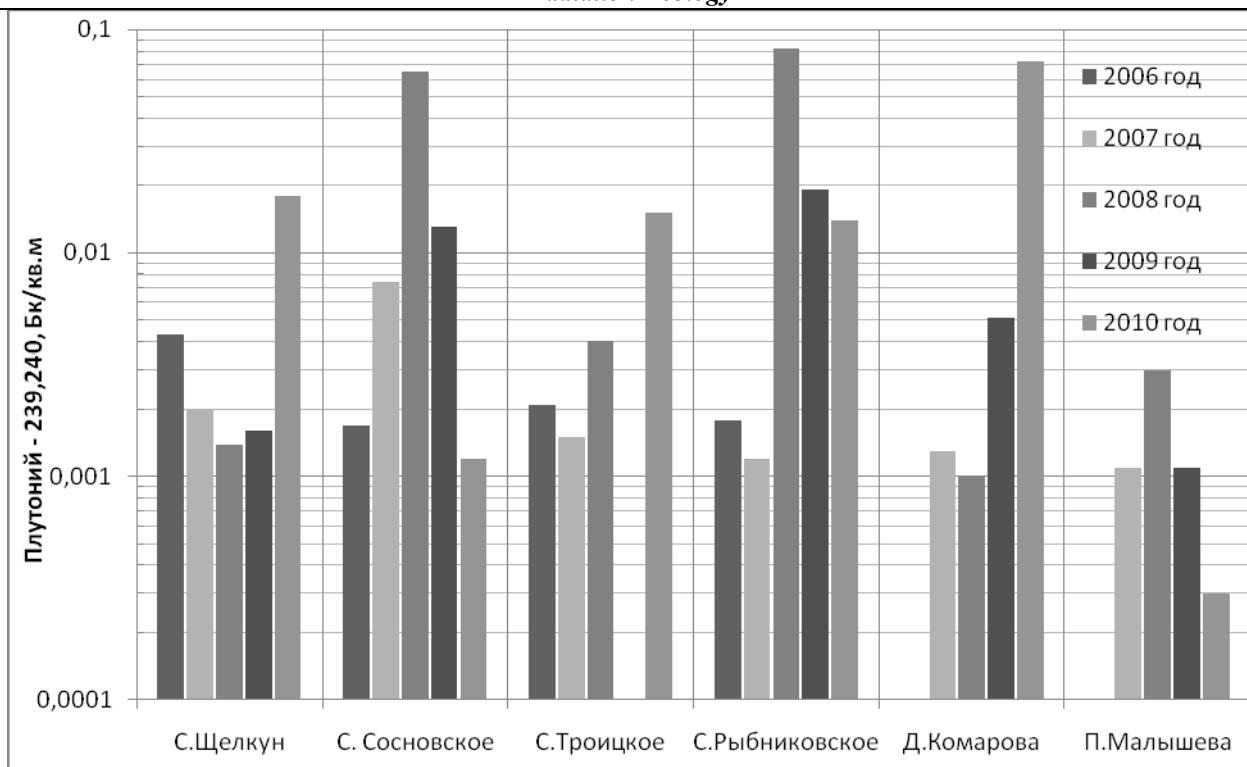


Рисунок 3 - Плотность загрязнения снежного покрова плутонием– 239,240 в 2006-2010 гг.

Количественные показатели плотности загрязнения снежного покрова  $^{239,240}\text{Pu}$  являются минимальными, соответствуют сотым и тысячным долям Бк в расчете на квадратный метр и пока не могут оказывать существенного влияния на радиационную обстановку исследованных участков.

## 2.2. Содержание радионуклидов в воде открытых водоемов

На рисунках 4, 5 и 6 представлена объемная активность радионуклидов в воде обследованных водоемов за четыре последних года.

В течении указанного периода наиболее низкое содержание  $^{137}\text{Cs}$  было отмечено в воде оз. Карасье (с. Троицкое). В озерах Щелкун, Сосновское и

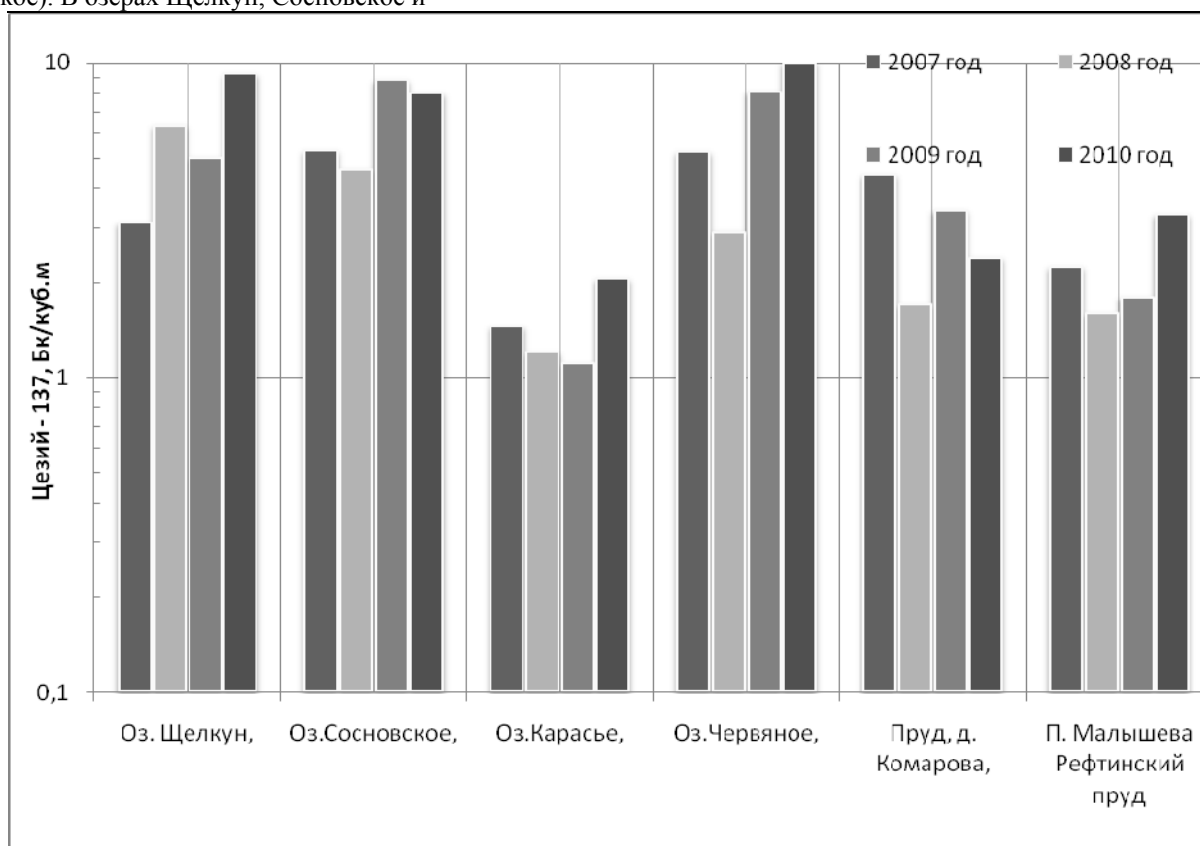


Рисунок 4 - . Объемная активность цезия-137 в пробах воды открытых водоемов в 2007-2010гг.

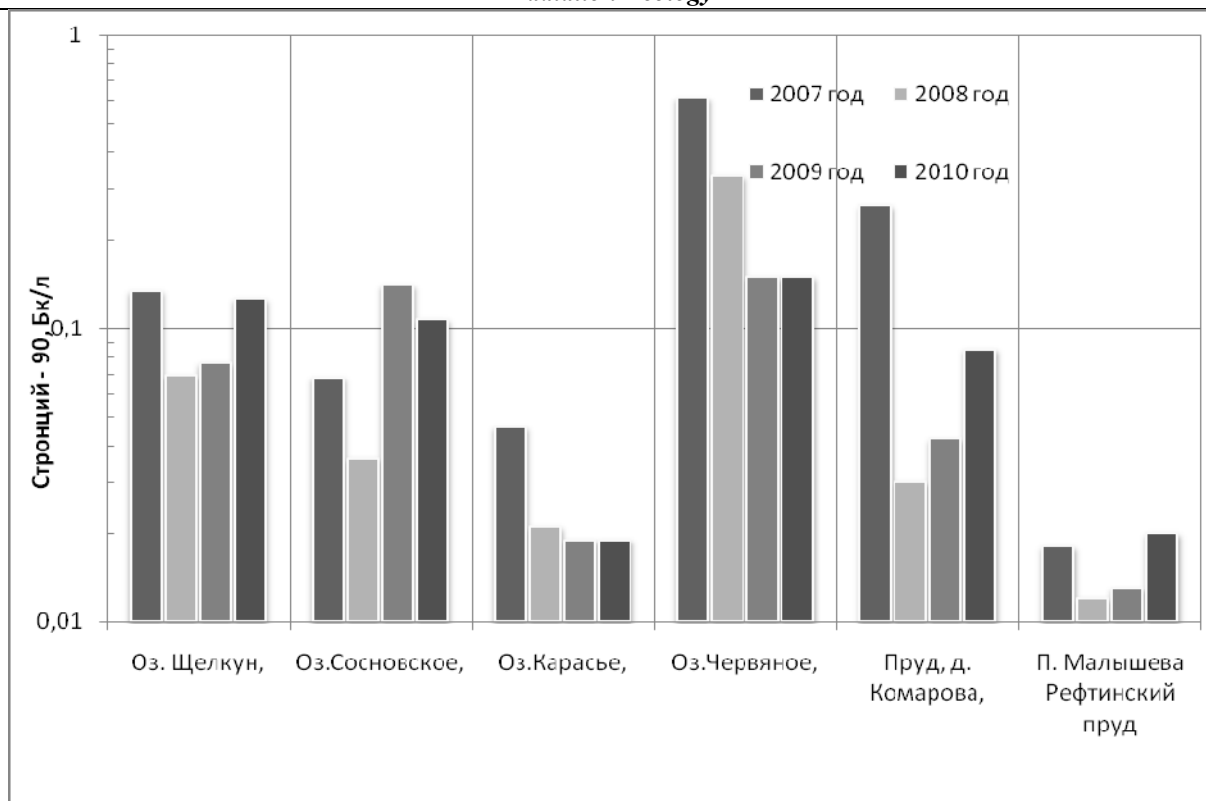


Рисунок 5 - Объемная активность стронция – 90 в пробах воды открытых водоемов в 2007-2010 гг.

Червяное объемная активность  $^{137}\text{Cs}$  в воде несколько выше, чем в водоеме контрольной точки (водоем п. Малышева). Наиболее высокое содержание  $^{90}\text{Sr}$  было отмечено в воде оз. Червяное. Это вполне объяснимо, поскольку данный водоем находится на территории ВУРСа, а основным компонентом из долгоживущих радионуклидов при радиационной аварии 1957г. являлся именно  $^{90}\text{Sr}$ . Следует отметить, что за период наблюдения с 2007 по 2010 гг. прослеживалась определенная тенденция снижения объемной активности  $^{90}\text{Sr}$ , которая стабилизировалась за два последних года на уровне 0,15 Бк/л. Стабильно низкое содержание  $^{90}\text{Sr}$  за весь период наблюдения отмечено в водоеме контрольной точки.

Также в воде озера Червяное наблюдается более высокое содержание  $^{239,240}\text{Pu}$ , превышающее показатели контрольной точки, причем с некоторой тенденцией роста в 2010 году.

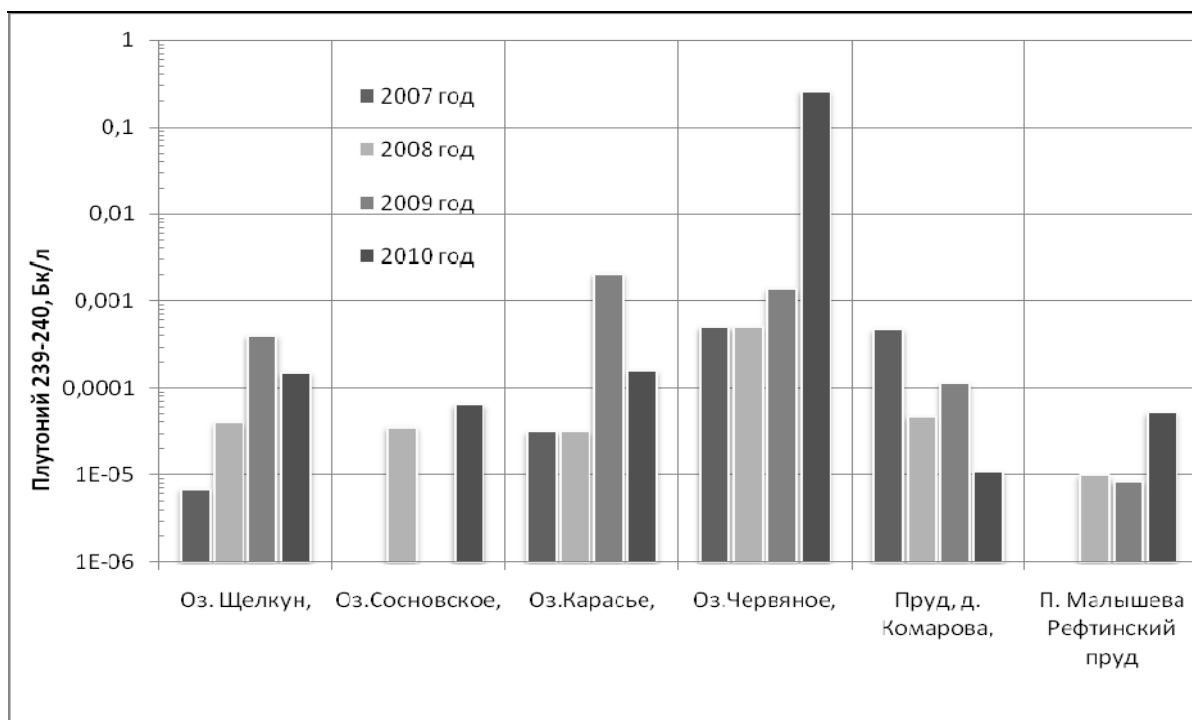


Рисунок 6 - Объемная активность плутония – 239,240 в пробах воды открытых водоемов в 2007-2010 гг.

Несмотря на представленную динамику, с точки зрения радиационной безопасности обследованные водоемы в целом можно считать благополучными. Согласно Нормам радиационной безопасности (НРБ – 99/2009) уровни вмешательства при содержании в воде отдельных радионуклидов составляют:  $^{137}\text{Cs}$  – 11 Бк/кг,  $^{90}\text{Sr}$  – 4,9 Бк/кг,  $^{239,240}\text{Pu}$  – 0,55 Бк/кг. Наиболее высокое содержание  $^{137}\text{Cs}$  отмечено в озерах Червяное и Сосновское, которое составило, соответственно, 8,1 и 8,8 Бк/м<sup>3</sup>, что на три порядка величин ниже уровня вмешательства. В тех же водоемах наблюдалось более высокое содержание  $^{90}\text{Sr}$ , равное 0,15 и 0,14 Бк/кг, что также значительно ниже допустимого уровня. Объемная активность  $^{239,240}\text{Pu}$  составила от тысячных долей Бк/л и ниже, что также на два порядка ниже уровня вмешательства.

### 2.3. Содержание $^{137}\text{Cs}$ , $^{90}\text{Sr}$ и $^{239,240}\text{Pu}$ в почве

Динамика плотности загрязнения почвы радионуклидами за ряд лет представлена на рисунках 7, 8 и 9. Показано, что плотность поверхностного загрязнения реперных участков  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  за период наблюдения не стабильна, сопровождается единичными подъемами и снижениями и отражает природную неравномерность распределения радионуклидов в почвенных слоях.

Уровень поверхностного загрязнения почвы  $^{239,240}\text{Pu}$  на реперных участках несколько выше, чем в контрольной точке. Участки с более высокой плотностью загрязнения  $^{239,240}\text{Pu}$  расположены в районе населенных пунктов Троицкое, Рыбниковское, а с 2009 года - и Комарова, что в ряде случаев совпадает с данными по содержанию радионуклида в снежном покрове.

Фоновый уровень радионуклидного загрязнения почвенно-растительного покрова сформировался в 50-60 гг. XX века за счет глобального загрязнения биосферы в период массированного испытания ядерного оружия.

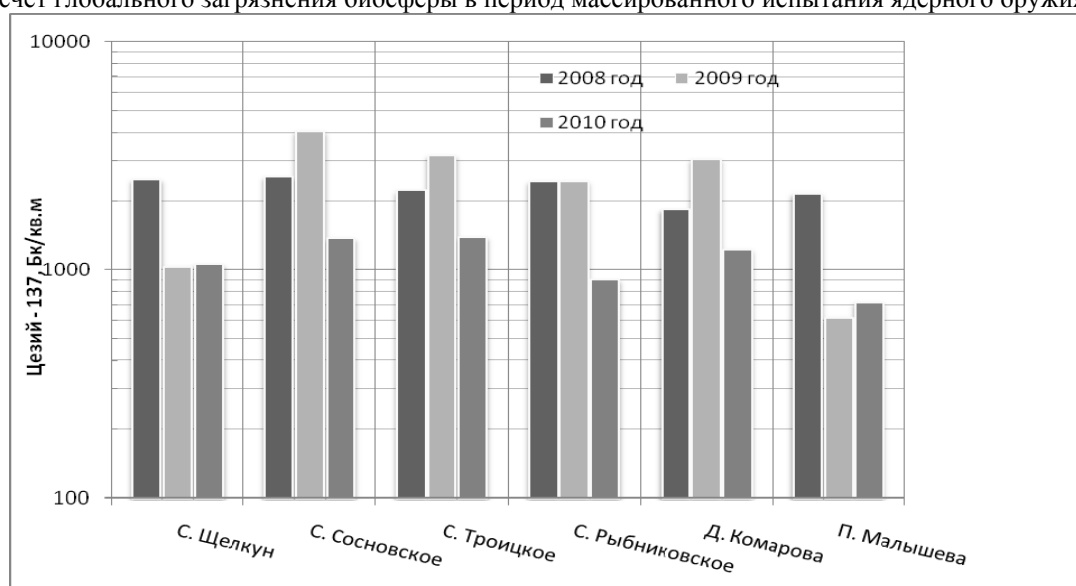


Рисунок 7. Поверхностное загрязнение почвы  $^{137}\text{Cs}$  в 2008-2010 гг.

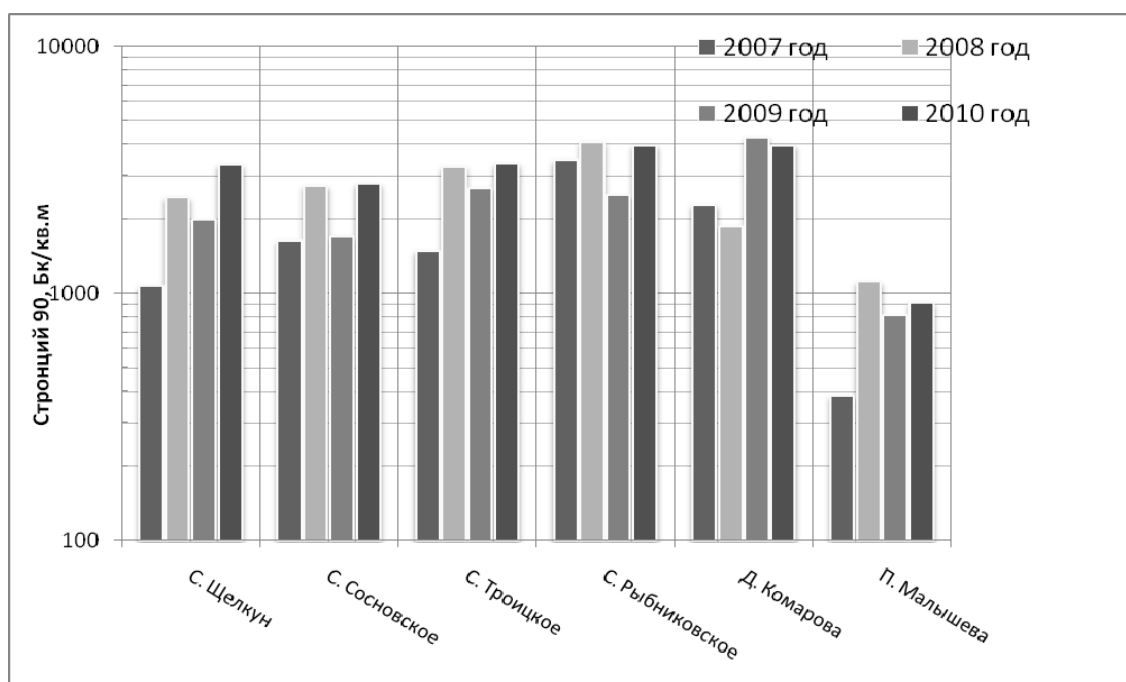


Рисунок 8. Поверхностное загрязнение почвы  $^{90}\text{Sr}$  в 2007-2010 гг.



В настоящее время его оценка представляет довольно трудную задачу, так как в регионах с высокой техногенной нагрузкой, как правило, имеются источники дополнительного поступления радионуклидов в окружающую среду. Это подтверждают данные об уровнях глобальных выпадений на участках в разных почвенно-климатических зонах.

В пределах Уральского региона, а также на большей части Свердловской области реальное содержание  $^{90}\text{Sr}$  в почве составляет 1,6-1,8 кБк/м<sup>2</sup>;  $^{137}\text{Cs}$  – 3-4 кБк/м<sup>2</sup>; изотопов Pu – 80-200 Бк/м<sup>2</sup>, что усреднено можно считать фоновыми значениями для Свердловской области [2].

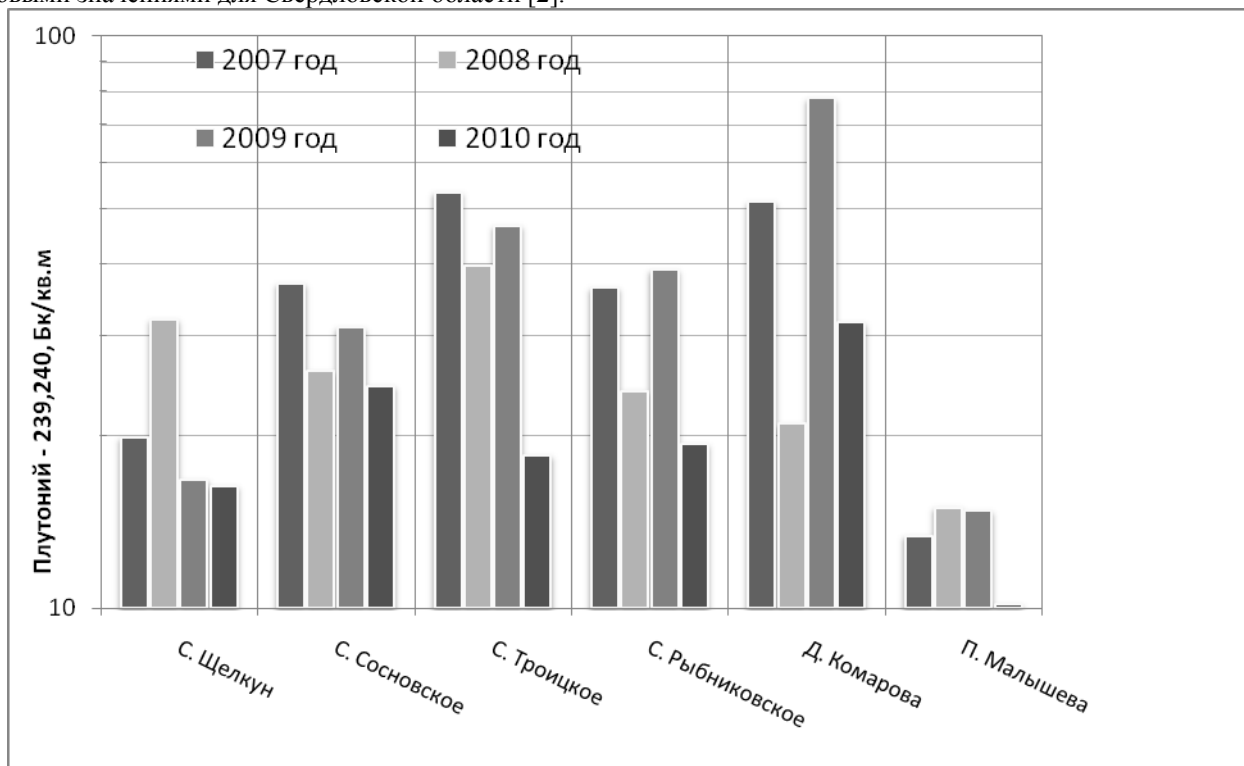


Рисунок 9. Поверхностное загрязнение почвы  $^{239,240}\text{Pu}$  в 2007-2010 гг.

Следует отметить, что плотность поверхностного загрязнения почв даже в пределах одного региона может существенно различаться. Так, только за один сезон на территории Свердловской области нами получены значения плотности загрязнения  $^{137}\text{Cs}$  от 614 до 4013 Бк/м<sup>2</sup>, по  $^{90}\text{Sr}$  - от 808 до 4245 Бк/м<sup>2</sup>, по  $^{239,240}\text{Pu}$  - от 14,8 до 77,9 Бк/м<sup>2</sup>. Значительные колебания поверхностного загрязнения почв отражают природную гетерогенность, характерную для объектов природной среды и зависят от многих факторов, включая характеристику самой почвы, особенности рельефа местности и радиационную ситуацию, сложившуюся за предыдущие годы.

#### Заключение

1. Газоаэрозольные выбросы ПО «Маяк» при работе в штатном режиме в настоящее время не представляют реальной опасности для территории Свердловской области.
2. В южной части Свердловской области возможны атмосферные выпадения  $^{239,240}\text{Pu}$ , отличающиеся от уровня глобальных выпадений. Но в количественном отношении они минимальны, соответствует сотым и тысячным долям Бк на квадратный метр и не оказывает существенного влияния на радиационную обстановку в Свердловской области.

*Работа выполнена при финансовой поддержке гранта РФФИ № 10-08-96021-р\_урал\_a.*

#### Список литературы

1. Бакуров А.С., Шейн Г.П., Аксенов Г.М., Ровный С.И. Обобщение многолетних результатов радиационного мониторинга в зоне влияния ПО «Маяк»/ Опыт преодоления последствий техногенных аварий и развитие атомных технологий: Материалы научно-практической конференции, посвященной 50-летию аварии на ПО «МАЯК» (Челябинск, 25-26 сентября 2007 года). - Челябинск: Челябинский институт ФГОУ ВПО «Уральская академия государственной службы», 2007. – С. 8-25.
2. Молчанова И. В., Караваева Е. Н., Михайловская Л. Н. Радиоэкологические исследования почвенно-растительного покрова. Екатеринбург: Изд-во УрО РАН, 2006. - 87 с.
3. Последствия техногенного радиационного воздействия и проблемы реабилитации Уральского региона. Под общей редакцией С.К. Шойгу. - М.: Издательство «Комтехпринт», 2002. — 287 с.
4. Трапезников А.В., Трапезникова В.Н., Донник И.М., Шкуратова И.А. Радиоэкологическая ситуация в Уральском регионе. Учебно-методические рекомендации. - Екатеринбург: Уральское изд-во, 2006г. – 45 с.
5. Chen Q., Aarkrog A., Nielsen S. P. et al. Determination of plutonium in environmental samples by controlled valence in anion exchange // J. Radioanalyt. and Nuclear Chem., 1993. V. 172. № 2. P. 281–288.

И.В. Покровский, В.И. Бутурлин, А.В. Пономаренко  
ЗАО «ПРИБОРЫ», Тел: (495) 937-4594, e-mail: [info@pribori.com](mailto:info@pribori.com)

*Вывод из эксплуатации предприятий атомного цикла и переработка ядерных отходов приводят к образованию большого количества радиоактивного материала, который хранится в виде матриц сложного радионуклидного состава в контейнерах различной формы. Для категорирования отходов и адекватного выбора методов захоронения или переработки, необходимо определить радионуклидный состав хранящегося в контейнерах материала и парциальную удельную активность радионуклидов. Методы неразрушающего контроля и паспорттизации РАО на основе современных гамма-спектрометрических методов высокого разрешения на основе оборудования фирмы Ortec, предлагаемые ЗАО «Приборы», а так же современные программные средства моделирования сложных геометрий измерения, позволяют эффективно решать такие задачи.*

## **1 Введение**

Разработка новых технологий обращения с РАО рассматривается как одна из важнейших задач для обеспечения ядерной и радиационной безопасности государства, снижения радиационного воздействия на человека и среду его обитания объектов использования атомной энергии. Эта проблема, обострившаяся в настоящее время, является результатом полувекowego накопления радиоактивных отходов.

В соответствии с определением к РАО относят вещества, содержащие радионуклиды, «не подлежащие дальнейшему использованию на данном или каком-либо другом производстве и в экспериментальных исследованиях» [1]. Следовательно, все вещества с любой активностью и в любой форме не должны рассматриваться как РАО, если возможно их дальнейшее использование.

Отработавшее ядерное топливо (ОЯТ), находящееся на хранении, составляет 0.0015% от общего объема РАО, накопленных в стране, но при этом имеет в среднем существенно большую активность. В связи с этим ОЯТ не следует рассматривать как абсолютные отходы, оно может рассматриваться как вторичный ресурс, перспективный сырьевой материал атомного комплекса, так как может быть переработано в топливо для АЭС [2].

В соответствии с требованиями новых нормативных документов, при паспорттизации радиоактивных отходов необходимо определение не только мощности дозы на поверхности контейнера, но и парциальных активностей, содержащихся в ней радионуклидов. Все нецелевые продукты ядерных технологий («отходы») должны подлежать классификации в местах их производства – паспорттизации по химическому и радиоактивному составу с оценкой массы и активности. Потоки разных по химическому составу продуктов должны быть разделены. В пределах экономической целесообразности следует максимально отделять низкоактивные материалы (вещества с удельной активностью менее  $10^6$  Бк/кг) [3].

Экологическое решение проблемы РАО рассматривается как программа на ближайшие десятилетия [4]. При этом на первом этапе для минимизации экономических затрат на ее выполнение акценты должны делаться на организацию учета движения основных химических веществ и радионуклидов во всех технологических цепочках. При этом специальные технологии для их разделения не применяются, а организуется паспорттизация всех нецелевых продуктов.

В России проблема РАО начала реально решаться лишь недавно, тогда как в других странах, в особенности в США, накоплен достаточно богатый опыт решения этой проблемы. Так, в части паспорттизации имеется множество как теоретических, так и практических наработок, позволяющих проводить паспорттизацию как с очень высокой точностью, так и с учетом максимальной экономической эффективности.

В настоящей статье мы хотели бы познакомить читателя с системами паспорттизации РАО, основанными на методе гамма-спектрометрии высокого разрешения. В статье представлены системы, разработанные и производимые фирмой АМТЕК (торговая марка ORTEC), являющейся одним из лидеров в этой области.

Интересы торговой марки ORTEC фирмы АМТЕК в России и странах СНГ на эксклюзивных правах представляет ЗАО «ПРИБОРЫ».

## **2 Общие проблемы в подходе к учету радиоактивных отходов:**

Среди наиболее общих проблем учета и контроля РАО выделим следующие:

- На предприятиях отсутствует единый комплекс приборов, позволяющий рутинным порядком за короткий промежуток времени «просмотреть» серию упаковок ТРО с помощью неразрушающих методов контроля и выдать паспорт, содержащий не только суммарную активность упаковки, но и радионуклидный состав с достоверные результаты анализа удельной активности каждого нуклида, как того требует нормативная документация [5]. Сегодня эта задача решается с помощью привлечения высококвалифицированных специалистов и радиохимической лаборатории, оснащенной полупроводниковыми спектрометрами. Кроме дороговизны, сроки получения окончательных результатов из-за долговременности радиохимического извлечения нуклидов исчисляются месяцами и встает проблема временного хранения партий отходов, которые не прошли паспортный контроль.
- Предприятия располагают современной нормативной документацией в виде норм и правил обращения с РАО и даже богатой методической базой выполнения лабораторных измерений. Но объектом такого рода методической документации является точечная проба из упаковки РАО после предварительной обработки: измельчение, растворение, усреднение и т.д.. При этом отбор представительных проб исключен не только в случае отходов,

представляющих собой металлические конструкции, строительный мусор, фильтры, спецодежду и др., но также и в случае деспергированных отходов: почво-грунты, растительность, зола, иловые отложения, химические реактивы, так как загрязнение этих видов отходов неравномерное.

- Отсутствует единый для всех предприятий, где накапливаются и хранятся РАО, документ, который восполнял бы пробел между нормативными параметрами РАО и методиками выполнения измерений для определения этих параметров – регламент работ по паспортизации РАО. Документ должен определить, каким образом паспортизовать партию отходов: единым паспортом на всю партию или каждую упаковку, допустимые методы измерений стандартизованных упаковок РАО, требования к аппаратуре, неопределенность выполнения измерений, их последовательность, правила безопасности при выполнении работ, контроль качества работ и др.

### 3 Основные типы систем паспортизации РАО

Линейка систем паспортизации РАО производства ORTEC включает в себя стационарные комплексы паспортизации **QED**, **SGS** и **TGS**, разработкой и производством которых занимается подразделение ANTECH ([www.antech-inc.com](http://www.antech-inc.com)), и мобильный паспортизатор РАО **ISO-CART**.

#### 3.1 Стационарные системы паспортизации РАО

##### 3.1.1 Система QED

В состав системы **QED** входит уникальная модульная защита, состоящая из нескольких частей, которые могут быть легко собраны двумя людьми за пару часов. Части защиты сделаны из 4-дюймовой стали, каждая партия которой специально проверяется на радиоактивную загрязненность. Для подавления рентгеновского излучения свинца используется легко дезактивируемый медный вкладыш.

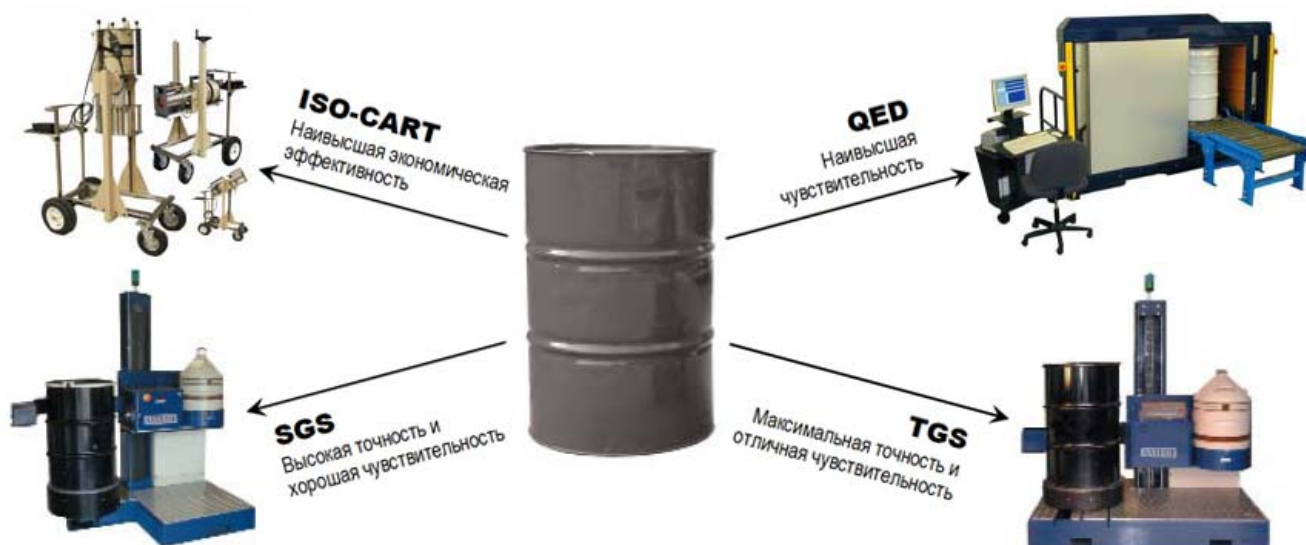
Стандартная бочка (200 л) загружается на конвейер, по которому попадает в полностью закрытую низкофоновою защитой измерительную камеру, где во время измерения она вращается на специальной платформе для усреднения эффектов самопоглощения в матрице.

В системе применяются три неколлимированных детектора из особо чистого германия (ОЧГ) серии **PROFILE**, направленные на боковую поверхность контейнера. Детекторы устанавливаются в позиции “внизу”, “посередине”, “вверху”, что обеспечивает высокую эффективность и разрешающую способность, одновременно максимизируя чувствительность системы для надежной идентификации нуклидов. Детекторы поставляются с функцией **SMART-1**, что позволяет наблюдать за параметрами детектора, отвечающими за его работоспособность. Для охлаждения используются электроохладители **X-Cooler II**. Для измерения контейнеров меньшего размера (коробок и т. п.) в системе предусмотрена четвертая, закрытая съемной заглушкой, позиция, расположенная между позициями “внизу” и “посередине”. Система **QED** позволяет измерять как небольшие пластиковые и картонные коробки, так и стандартные бочки объемом 200 литров и весом до 725 кг.

В качестве спектрометрического тракта в системе используется современный цифровой многоканальный анализатор **DSPEC jr 2.0**, позволяющий проводить сверхнадежные и стабильные измерения. Связь с компьютером осуществляется через интерфейсы USB и ETHERNET, что позволяет установить пульт оператора на безопасном расстоянии от области с высоким уровнем радиации. В основу программного комплекса **QED** заложены надежные проверенные алгоритмы программы **GammaVision**, а для учета эффектов поглощения в матрице и в стенках используется уникальный интерполяционный алгоритм.

##### 3.1.2 Система SGS

Система **SGS** (Segmented Gamma Scanner) использует методику сегментного сканирования и является наиболее применяемой для получения ответа о радионуклидном составе и активности РАО, в особенности когда речь заходит об определении таких радионуклидов, как  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . Основным преимуществом системы **SGS** является использование коррекции плотности матрицы, основанной на коэффициенте трансмиссии.



Обычно в состав системы **SGS** входит коллимированный детектор ОЧГ и образцовый (известной активности) источник гамма-излучения, помещаемый со стороны бочки, противоположной детектору ОЧГ. Излучение от образцового источника проходит через центральную ось бочки и регистрируется детектором ОЧГ. При этом во время измерений бочка вращается. Стандартная 200 л бочка виртуально разделяется на 16 вертикальных сегментов, а использование коллиматора позволяет измерять каждый из сегментов независимо от другого. Конечный результат представляет собой сумму 16 измерений.

Для паспортизации контейнера проводятся по два измерения для каждого из сегментов. Первое – измерение трансмиссии с открытым образцовым источником. В течении второго измерения образцовый источник закрывается и результатом является спектр, полученный от самого образца. Площади гамма-пиков в этом спектре используются для определения активности радионуклидов в данном сегменте, которые затем корректируются с использованием спектра, полученного при измерении трансмиссии. Следует отметить, что метод работает корректно только для достаточно однородных матриц. Для учета плотности матрицы также может использоваться метод «дифференциального затухания», когда для расчета параметров матрицы используется разница в ослаблении для разных энергий гамма-излучения. Такой метод применим для излучателей, имеющих две и более гамма-линии, и может использоваться для радионуклидов, содержащихся в самом измеряемом контейнере.

Для уменьшения времени паспортизации система **SGS** может комплектоваться несколькими детекторами и источниками для одновременного измерения более чем одного сегмента контейнера. Для повышения чувствительности (уменьшения минимально детектируемой активности) система **SGS** может использоваться с защитой, аналогичной защите, применяемой в системе **QED**.

### 3.1.3 Система TGS

Система **TGS** (Tomographic Gamma Scanner) является развитием методики сегментного сканирования, расширяющим диапазон её применения за счет возможности измерения гетерогенных матриц. Система **TGS** для каждого из 16 сегментов измеряемого контейнера набирает и обрабатывает 150 трансмиссионных спектров (с открытым образцовым источником) и 150 эмиссионных спектров (с закрытым образцовым источником). При этом бочка не только вращается вокруг своей оси, но и одновременно перемещается в горизонтальной плоскости.

При обработке трансмиссионных спектров используется метод вероятностного анализа, результатом которого является двумерное распределение плотности для каждого из сегментов. Результатом измерения эмиссионных спектров является двумерное распределение активности в сегменте. Метод TGS-анализа комбинирует полученные распределения, что позволяет определить распределение активности в сегменте с очень высокой точностью и избежать ошибок измерения, связанных с возможным присутствием «горячих» частиц в матрице контейнера. Конечным результатом TGS-анализа являются трехмерные распределения как для коэффициента ослабления, так и для активности, которые могут быть использованы как элемент неразрушающего анализа РАО.

Для повышения чувствительности система **TGS** может использоваться с защитой, а применение детекторов ОЧГ высокого разрешения позволяет обрабатывать полученные спектры с помощью компьютерного кода *PC/FRAM*, разработанного специально для определения изотопного соотношения плутония, а также соотношения уран/плутоний в измеряемой матрице.

Сравнительная характеристика стационарных систем паспортизации дана в таблице.

Таблица 1. Сравнительная характеристика стационарных систем паспортизации РАО.

Система	Диапазон ошибки	Время измерения (бочка 200 л)	Макс. размер контейнера
<b>QED</b>	15% – 25%	10 мин.	208 л
<b>SGS</b>	10% – 30%	20 – 30 мин.	400 л
<b>TGS</b>	5% – 20%	40 – 60 мин.	400 л

### 3.2 Мобильная система паспортизации РАО

Использование стационарных систем паспортизации не всегда оправданно. В частности, это касается случаев очень больших контейнеров или измерений загрязнения почвы. Так же не всегда представляется возможным переместить контейнер с РАО к месту измерения. В этих случаях более целесообразным выбором выглядит мобильная система, способная решать задачи паспортизации в любом месте. Другим существенным преимуществом мобильной системы является её цена, т. к. финансовые возможности служб, ответственных за учет и хранения РАО, зачастую довольно ограничены.

Мобильная система **ISO-CART** – идеальное решение широкого круга задач по определению активности в режиме *in-situ* с помощью гамма-спектрометра. Комплекс внесен в Государственный реестр средств измерений (№ 26016-03) и допущен к применению в Российской Федерации. Тип – комплекс гамма-спектрометрический мобильный.

К комплексу имеется аттестованная МВИ для компактированных отходов.

### 3.2.1 Компоненты мобильного паспортизатора PAO ISO-CART.

Специальная тележка несет все необходимые компоненты мобильного паспортизатора: детектор ОЧГ; коллиматор; цифровой многоканальный анализатор и портативный компьютер. Программный пакет обеспечивает получение количественных результатов.

Калибровка системы требует использования только точечного источника из нескольких гамма-излучающих изотопов. Далее используется патентованная ORTEC автоматическая калибровка по энергии и эффективности, что делает настройку системы крайне простой. В системе могут применяться любые стандартные ОЧГ детекторы. Смена детектора не требует специальной перекалибровки на фабрике.

#### 3.2.1.1 Детектор ОЧГ.

ОЧГ детекторы фирмы ORTEC заслуженно занимают лидирующие позиции как по своим характеристикам, так и по качеству. Относительная эффективность детекторов может достигать 150%. Новая серия детекторов с технологией *SMART-1* повышает надежность измерений благодаря контролю параметров детектора в процессе измерений. В составе комплекса *ISO-CART* может использоваться любой из детекторов ORTEC. Комплекс в стандартной поставке включает в себя детектор *GEM* (р-типа) или *GMX* (п-типа) по технологии *SMART-1* эффективностью от 10 до 120%.

Портативные всенаправленные детекторы применяются с переносными дьюарами типа *Gamma Gage* объемом от 1 л до 5 л и дьюарами нового типа *MOD* объемом 3 л или 7 л. При заказе в качестве криогенной системы паспортизатора электромеханического охладителя *X-Cooler II* появляется возможность отказа от использования жидкого азота.

#### 3.2.1.2 Коллиматоры.

Обычно бочки с отходами хранятся в том же месте, где проводятся измерения. Радиоактивное излучение от этих бочек может значительно увеличить внешний фон, причем этот фон индивидуален для каждой бочки. Чтобы уменьшить вклад фона, используются коллиматоры, которые защищают детектор и ограничивают поле “зрения” детектора в пределах одной бочки. Стенки коллиматора должны быть выполнены из свинца толщиной не менее 15 мм. Вместо свинца возможно использование вольфрама или нержавеющей стали. Если пики вторичного рентгеновского излучения от материала коллиматора накладываются на пики исследуемых нуклидов и мешают нормальному анализу, рекомендуется вводить в коллиматор дополнительные поглощающие слои из меди и кадмия. Лучшим материалом для изготовления коллиматора является вольфрам, т. к. он обладает наибольшей плотностью. Однако, важна и цена изготовления, свинец с этой точки зрения предпочтителен. Возможен выбор из трех разных коллиматоров:

1. Легкий коллиматор *SHD-1* из свинца имеет толщину стенок 16 мм. Вес: 16.82 кг.
2. Средний коллиматор *SHD-2* из медно-вольфрамового сплава имеет толщину стенок 13 мм. Вес: 27.27 кг. Он обеспечивает лучшую защиту при меньшем объеме коллиматора.
3. Тяжелый коллиматор *SHD-3* из свинца имеет толщину стенок 46 мм. Вес: 68 кг. Предназначен для работы на территориях с высоким фоном.

Все коллиматоры имеют внутреннюю оболочку из меди толщиной 2 мм. Коллиматор можно поменять за несколько минут. Большие защиты изготовлены из отдельных секций, что позволяет работать с комплексом одному человеку.

#### 3.2.1.3 Многоканальный анализатор.

В большинстве случаев измерения проводятся в неотопляемых помещениях, где температура может сильно меняться в период измерений. Стабильность измерительной электроники очень важна, в особо экстремальных случаях должна использоваться цифровая стабилизация. Цифровая обработка сигналов позволяет использовать оптимальные фильтры и сложные алгоритмы, учитывающие специфические свойства детекторных систем, извлекать информацию, которую сложно или вообще невозможно получить с помощью аналоговых систем. Оцифровка данных на раннем этапе обеспечивает меньшее искажение информации за счет шумов и наводок. Кроме того, цифровая обработка допускает работу при более высоких нагрузках и позволяет уменьшить или совсем устранить мертвое время. Наконец, использование цифровой обработки делает аппаратуру гораздо более компактной. Одним из наибольших преимуществ цифровой системы является практически бесконечное количество комбинаций доступных параметров формирования импульса. Это позволяет для каждого конкретного германиевого детектора подобрать наилучший режим работы, позволяющий достичь на данном конкретном детекторе наилучшего разрешения и пропускной способности.

Портативный цифровой многоканальный анализатор (МКА) *DigiDART* успешно применяется при решении прикладных задач, где требуются мобильные средства измерения и является штатным блоком электроники в системе *ISO-CART*. МКА *DigiDART* выполнен в ударопрочном, брызгозащищенном, хорошо дезактивируемом корпусе. Внешние разъемы прочные и герметичные, а встроенная батарея находится внутри под брызгозащищенной крышкой.





МКА *DigiDART* имеет энергонезависимую память, встроенный дисплей 240 x 160 точек и клавиатуру, являясь единственным в мире цифровым МКА, способным управлять гамма-спектрметром и выдавать предварительные результаты без подключения к компьютеру. Для получения исчерпывающей информации информация с МКА *DigiDART* может быть считана в компьютер по USB.

- Запись в память более 100.000 имп/сек
- Цифровая стабилизация спектра.
- Коэффициент усиления: 0,45 – 32.
- Температурный диапазон: от -10 до 60°C
- Время работы от батареи: до 9 часов
- Размеры: 200×100×75 мм
- Вес: 0,86 кг (с батареями)
- Работает без ПК или с ПК
- Живой встроенный дисплей и клавиатура
- Калибровка по энергии с клавиатуры
- Быстрая связь с ПК по интерфейсу USB
- Определение нуклидов и расчет их активности для 9 выбранных пиков
- Энергонезависимая память на 23 спектра 16К каналов (614 спектров по 512 каналов)
- Поддерживает новый стандарт детекторов *SMART-I*
- С программой *PC/FRAM* с высокой точностью решает задачи учета и контроля специальных ядерных материалов.



МКА *DigiDART* внесен в Государственный реестр средств измерений (№ 23179-08) и допущен к применению в Российской Федерации. Тип – спектрометр-радиометр цифровой портативный многоканальный гамма- и рентгеновского излучения.

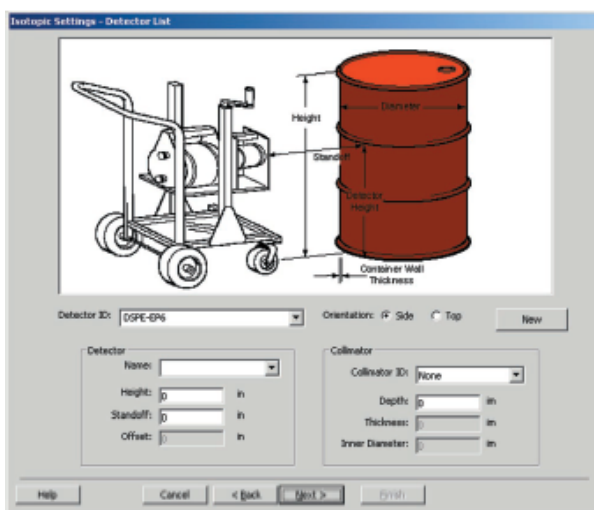
### 3.2.1.4 Программное обеспечение.

В качестве программного обеспечения в состав системы **ISO-CART** входит программный комплекс **ISOPLUS-B32**, предназначенный для решения широкого круга задач, связанных с измерением спектров гамма-излучения. Программа основана на исследовательской работе, изначально проведенной в лабораториях министерства энергетики США и, в частности, в лаборатории US Measurements Laboratory (EML-NYC). В ходе этой работы были проанализированы тысячи образцов контейнеров различного типа и была разработана методика, главным преимуществом которой является возможность использования ЛЮБОГО детектора ОЧГ.

Программный комплекс **ISOPLUS-B32** является 32-битным Windows 2000/XP приложением и разработан для максимального удовлетворения требований гамма-спектрометриста. Программа может работать с любым ОЧГ детектором, процедура подготовки и калибровки занимает несколько минут.

В программе используется несколько стандартных геометрических шаблонов, которые могут быть использованы для описания реальных контейнеров: *цилиндры* (измерения сбоку и сверху, включая трубки); *прямоугольные коробки*; *точечные источники*; *бесконечная плоскость* (измерения на почве). При этом функция расчета “поля зрения” коллиматора позволяет правильно выбрать расстояние между образцом и детектором для данного коллиматора.

Для измерения упаковок, контейнеров, труб и т. п. детектор должен быть охарактеризован с помощью поверенных точечных источников. Эта первоначальная калибровка экстраполируется, чтобы соответствовать физическим параметрам реального образца: геометрии и материалу контейнера, составу матрицы. Математическая модель, используемая в программе, основана на методике “point-kernel”, когда весь образец разбивается на множество единичных объемов (вокселей), причем вклад в составной спектр каждого из них рассчитывается отдельно. Подход является более практичным по сравнению с методом Монте-Карло, т. к. не требует специальной характеристики ОЧГ детектора. Метод Монте-Карло может дать лучшие результаты лишь при очень близком расположении образца к детектору (по сравнению с диаметром детектора) и идеальном образце, т. к. при работе в близкой геометрии начинают сказываться различия между детекторами одной и той же эффективности по отношению к точечному образцу, но при обычных образцах и обычных дистанциях другие источники ошибок измерений дают существенно больший вклад в общую погрешность измерения. Основными источниками ошибки при измерениях, о которых идет речь, являются неомогенность образца, неизвестная матрица образца, нестрогая или неизвестная геометрия. Эти источники ошибки полностью поглощают ошибку калибровки. То, что на самом деле «попадается» на пути гамма-лучей, может существенно отличаться от предположений расчета Монте-Карло, т.к. при паспортизации РАО вскрытие



контейнеров до их измерения запрещается и пользователь никогда не знает матрицу образца достаточно хорошо. Для негомогенных материалов калибровка по методу Монте-Карло не имеет никаких преимуществ.

За счет точного описания геометрии кристалла детектора последняя версия программы *ISOPLUS-B32* также может работать в геометрии «в упор».

Форма и содержание отчета в программе легко настраиваемы в соответствии с Вашими требованиями. Результаты анализов хранятся в базе данных, совместимой с Access™, что позволяет легко найти нужный анализ, сделать сводный отчет и вывести его на печать.

### 3.2.1.4 Дополнительное оборудование.

Крепкая транспортная тележка с большими колесами позволяет доставить систему в любое место. Детектор можно установить на высоте от 38 см до 120 см от пола. Поворотный механизм позволяет устанавливать детектор под любым углом к горизонту. Тележка компактна и может быть легко доставлена к месту измерений силами одного человека. Размеры: 122 × 55 × 101 см, собственный вес – 25 кг.

Дополнительное оборудование расширяет возможности системы. Дополнительно могут быть заказаны: лазерный прицел-дальномер, система для заливки жидкого азота, радиомодем для беспроводной связи детектор-анализатор, вращающаяся подставка для бочек, тренога для установки детектора при измерениях на почве, а также различные коллиматоры и защиты для работы на площадках с высоким гамма-фоном.

### 3.2.2 Принципы измерения.

Комплекс *ISO-CART* позволяет работать с типичными образцами различной геометрии. Кроме того, любые геометрии могут быть изменены оператором во время анализа, чтобы обеспечить описание *любых образцов*.

Мобильный комплекс *ISO-CART* имеет существенное преимущество над стационарными системами с точки зрения возможности паспортизации крупных объектов. При измерении большого контейнера с отходами производят несколько измерений с различных позиций, чтобы получить наиболее репрезентативный результат. Если доступна только одна система, эти измерения проводятся последовательно. Программа усредняет результаты с учетом весовых коэффициентов, задаваемых пользователем. При использовании нескольких спектрометров одновременно можно отображать все набираемые спектры для лучшего понимания рассматриваемого случая.

Перед поставкой покупателю комплекс калибруется на фирме ORTEC с предоставлением сертификата. Операторы могут в любое время проверить калибровку, используя автоматические функции пакета *ISOPLUS-32* или встроенную систему контроля качества (QA). Перекалибровку можно легко проводить в полевых условиях. Для этого детектор не надо отсылать изготовителю. Более того, с комплексом можно использовать любые детекторы. Просто замените детектор, откалибруйте его по точечному источнику и комплекс готов к работе с минимальными потерями времени и средств.

Точность полученных результатов оценить довольно сложно. Наиболее важными для оценки погрешности анализа являются несколько факторов: статистика и время набора спектра, плотность и степень негомогенности матрицы, неопределенность калибровки и число измерений одного контейнера.

Для используемой методики точность в диапазоне от 10% до 50% считается достаточной и репрезентативной. Для точно заданной геометрии и гомогенных легких сред можно получить более высокую точность.

### 3.2.3 Используемые принципы расчета

#### 3.2.3.1 Методика расчета при анализе контейнеров

Активность каждого обнаруженного нуклида может быть определена по формуле:

$$A_{isotope} = \frac{PA_{meas}(CF_{cont})(CF_{mat})(CF_{sam})(CF_{geo})(CF_{coll})(CF_{air})}{BR_{\gamma ray}(\epsilon_{det})}, \text{ где:}$$

$A_{nuclide}$  – полученная в отчете активность нуклида, Бк;

$PA_{meas}$  – измеренная скорость счета импульсов в пике полного поглощения, соответствующего гамма-излучению указанного изотопа, имп./с;

$CF_{cont}$  – поправка на ослабление излучения контейнером;

$CF_{mat}$  – поправка на ослабление излучения матрицей;

$CF_{sam}$  – поправка на ослабление излучения внутри образца;

$CF_{geo}$  – геометрическая поправка;

$CF_{coll}$  – поправка коллиматора;

$CF_{air}$  – поправка, учитывающая поглощение в воздухе;

$Br_{\gamma ray}$  – абсолютная вероятность эмиссии гамма-излучения;

$\epsilon_{det}$  – эффективность детектора, измеренная с использованием эталонного точечного источника NIST.

Когда кроме активности нуклида необходимо представить в отчете количество грамм,  $Mass_{nuclide}$ , то используется следующая формула:

$$N = \frac{A_{nuclide}}{\lambda_{nuclide}} \quad Mass_{nuclide} = \frac{N \cdot At}{Av}, \text{ где:}$$

$N$  – число атомов данного нуклида;

$\lambda_{nuclide}$  – постоянная распада нуклида, с<sup>-1</sup>;

$At$  – атомный номер измеренного нуклида;

$Av$  – число Авогадро.

#### 3.2.3.2 Результат усреднения нескольких усреднений

Результаты нескольких измерений усредняются, причем взвешенное среднее значение вычисляется по формуле:



$$A_{average} = \sum A_i \cdot w_i / \sum w_i, \text{ где:}$$

- $A_i$  – активность, вычисленная по i-ому измерению  
 $w_i$  – весовой коэффициент i-ого измерения, задаваемый пользователем

### 3.2.3.3 Учет поглощения в стенке контейнера

Коэфф. поправки на учет поглощения в стенке контейнера рассчитывается по формуле:

$$CF_{cont} = e^{\mu_{cont} \rho_{cont} x_{cont}}, \text{ где:}$$

- $\mu_{cont}$  – массовый коэффициент ослабления контейнера, см<sup>2</sup>/г;  
 $\rho_{cont}$  – плотность материала контейнера, г/см<sup>3</sup>;  
 $x_{cont}$  – толщина контейнера, см.

В базе данных программы содержатся данные о коэффициентах поглощения большого числа стандартных материалов. Есть возможность дополнения этой библиотеки в ручную или автоматически по набранным спектрам.

### 3.2.3.4 Учет поглощения в матрице

Если матрица относительно гомогенна, то коррекция на самопоглощение в матрице рассчитывается по формуле:

$$CF_{mat} = \frac{\mu_{mat} \rho_{mat} x_{mat}}{1 - e^{-\mu_{mat} \rho_{mat} x_{mat}}}, \text{ где:}$$

- $\mu_{mat}$  – массовый коэффициент поглощения матрицы см<sup>2</sup>/г  
 $\rho_{mat}$  – плотность матрицы г/см<sup>3</sup>  
 $x_{mat}$  – расстояние источника от гамма-излучения до детектора

Материал матрицы пользователь выбирает сам. Возможный выбор включает в себя: тряпки, цемент, вода, уран, сталь, оксид алюминия, UF<sub>6</sub>.

Если в материале матрицы содержится уран, программа вычисляет поглощение в матрице и в уране отдельно. Для расчета коэффициента поправки на поглощения в негомогенной матрице используется та же формула, что и для расчета поглощения в контейнере:

$$CF_{cont} = e^{\mu_{cont} \rho_{cont} x_{cont}}$$

### 3.2.3.5 Коррекция на геометрию

ISOPLUS-B32 содержит возможности моделирования, позволяющие пользователю описывать геометрическую конфигурацию, используемую при измерениях. Многие используемые при измерениях конфигурации представляются удаленным точечным источником, даже если локализованная активность содержится внутри большого контейнера. Для вычисления эффективности детектора в этом случае, геометрические поправки используют закон пропорциональности обратному квадрату расстояния до источника. Расстояние от источника излучения внутри измеряемого предмета сравнивается с расстоянием между детектором и эталонным точечным источником, первоначально используемым для калибровки абсолютной эффективности германиевого (HPGe) детектора.

Геометрический поправочный фактор описывается формулой:

$$CF_{geo} = \left( \frac{D_{meas}}{D_{std}} \right)^2, \text{ где:}$$

- $CF_{geo}$  – геометрическая поправка;  
 $D_{meas}$  – расстояние от лицевой поверхности детектора до центра образца, см;  
 $D_{std}$  – расстояние от лицевой поверхности детектора до эталонного точечного источника, см.

Для конфигурации типа цилиндра или коробки предполагается, что контейнер делится на множество равных объемов.

Расстояние до детектора и соответствующие поправочные факторы вычисляются для каждого объемов. Затем вычисляется средний поправочный фактор для каждой конфигурации контейнера. Поправочные факторы для ослабления излучения контейнером и матрицей вычисляются отдельно.

### 3.2.3.6 Коэффициент коррекции коллиматора

Если контейнер достаточно большой, некоторая часть гамма-излучения будет проходить через любой коллиматор, который может окружать германиевый детектор. Угол проникновения гамма-лучей вычисляется для каждого минимального объема контейнера. Затем вычисляется соответствующее данному углу расстояние, которое гамма-лучи проходят в коллиматоре.

Поправочный фактор коллиматора сильно зависит от диаметра коллиматора, глубины и толщины его стенок.

Уравнение, описывающее ослабление гамма-излучения в коллиматоре,  $CF_{coll}$  следующее:

$$CF_{coll} = e^{\mu \rho \chi_{pen}}, \text{ где:}$$

- $\mu$  – массовый коэффициент ослабления для коллиматора, см<sup>2</sup>/г;  
 $\rho$  – плотность коллиматора, г/см<sup>3</sup>;  
 $\chi_{pen}$  – расстояние, пройденное гамма-излучением через коллиматор, см.

Расстояние, пройденное гамма-излучением через коллиматор,  $\chi_{pen}$ , находится из следующего уравнения:

$$\chi_{pen} = \chi_{coll} \sin \Theta, \text{ где:}$$

- $\chi_{coll}$  – толщина коллиматора, см.

Расстояние, пройденное гамма-излучением в коллиматоре, вычисляется для всех элементарных объемов, после чего вычисляется среднее расстояние для данной емкости.

1. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99)
2. Поляков В.И. Ядерная энергетика без радиоактивных отходов // ЭНЕРГИЯ. 2001. №7
3. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности. (ОСПОРБ-99)
4. Проект Федерального закона "Об обращении с радиоактивными отходами"
5. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-2002)

## ПЕРСИСТЕНТНОЕ ПОСЛЕСВЕЧЕНИЕ В $\beta$ -ОБЛУЧЕННЫХ МОНОКРИСТАЛЛАХ НИТРИДА АЛЮМИНИЯ

Вохминцев А.С., Спиридонов Д.М., Вайнштейн И.А.

УрФУ имени первого Президента России Б.Н.Ельцина, НОЦ «Наноматериалы и нанотехнологии»  
620002, Россия, г. Екатеринбург, ул. Мира, 19, vas@dpt.ustu.ru, spirit-87@mail.ru

### Введение

Уникальные электрофизические свойства нитрида алюминия делают его весьма перспективным материалом для применения в различных областях электроники, оптики и дозиметрии. Недавние исследования показали, что AlN в различных структурных модификациях может послужить основой для создания высокочувствительных детекторов  $\beta$ - и УФ-излучения [1,2]. При этом основным функциональным недостатком детекторной керамики на основе нитрида алюминия, стабилизированной оксидом иттрия, является сильный фединг [3]. В этой связи цель данной работы состояла в изучении процессов послесвечения в монокристаллах нитрида алюминия, подвергнутых воздействию  $\beta$ -излучения.

### Образцы и методика

Исследуемые в работе монокристаллические образцы были получены из мелкодисперсного промышленного порошка AlN методом сублимации-реконденсации при температурах 1900-2000 °С, в атмосфере азота при давлении не ниже 750 мм.рт.ст. [4]. В окончательном виде диаметр всех образцов – 15 мм, толщина – 0.25-0.50 мм, качество обработки поверхности – ери-ready.

Исследования параметров послесвечения и процессов термолюминесценции проводились на оригинальной спектрометрической установке. Регистрация осуществлялась в спектральной области 200 – 600 нм посредством фотоэлектронного умножителя ФЭУ-39А, работающего в счетном режиме. Для возбуждения люминесценции в кристаллах использовался источник  $\beta$ -излучения  $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$  мощностью 32 мГр/мин в месте расположения образца. Перед началом исследований образцы подвергались отжигу до температуры 773 К. После  $\beta$ -облучения образцов тестовой дозой 16 мГр регистрировалось изменение интенсивности послесвечения при комнатной температуре. Далее проводилось измерение интенсивности ТЛ в ходе линейного нагрева образцов до 673 К со скоростью 2 К/с.

### Результаты и обсуждение

На рисунке 1 приведена кривая затухания люминесценции при комнатной температуре для исследуемых монокристаллических образцов AlN после воздействия  $\beta$ -излучением. Видно, что в результате облучения регистрируется устойчивое продолжительное свечение в изучаемой спектральной области. При этом интенсивность наблюдаемого послесвечения за 1 мин уменьшается на 40 %, за 5 мин – на 75 %, за 60 мин – на 95 %. С ростом дозы воздействия указанная персистентная люминесценция становится устойчивой в течение продолжительного периода времени и наблюдается после облучения различными видами корпускулярного и фотонного излучения ( $\beta$ ,  $\gamma$ , UV, X-ray) [3,5].

Анализ показал, что полученные кривые могут быть представлены суперпозицией двух экспоненциальных компонент С1 и С2, с параметрами  $t_1 \approx 60$  с и  $t_2 \approx 600$  с, соответственно. Таким образом, можно предположить, что в процессе послесвечения принимают участие два типа центров захвата носителей заряда. Мелкие ловушки, определяющие быструю компоненту С2, очевидно, находятся очень близко к дну зоны проводимости, вследствие чего происходит их опустошение уже при комнатной температуре. Данные ловушки по некоторым литературным данным, могут быть обусловлены  $O_N$ -центрами [6]. Анализ литературы показал, что более глубокие ловушки с термической энергией активации 0.5 – 0.7 эВ, определяющие медленную компоненту С2, могут быть  $V_N$ -центрами [7].

Регистрируемое персистентное послесвечение облученных образцов, указывает на опустошение ловушек, ответственных за хранение дозиметрической информации. Таким образом, необходимо контролировать степень заселенности ловушек (или концентрацию носителей заряда на ловушках). Поэтому далее проводились исследования ТЛ при варьировании времени хранения образцов в темноте при комнатной температуре.

При измерении интенсивности термостимулированного свечения обнаружено, что в монокристаллическом нитриде алюминия имеет место падение ТЛ сигнала с увеличением времени хранения облученных образцов в темноте при комнатной температуре (см. рисунок 2). Накопленная светосумма за время хранения  $\tau = 5$  мин уменьшаются на 15 %, за 30 мин – на 30 %, за 1 сутки (1440 мин) – на 75 %. Полученные значения близки к данным по суточному федингу в 66 % при  $\beta$ -облучении для керамики AlN-Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [3].

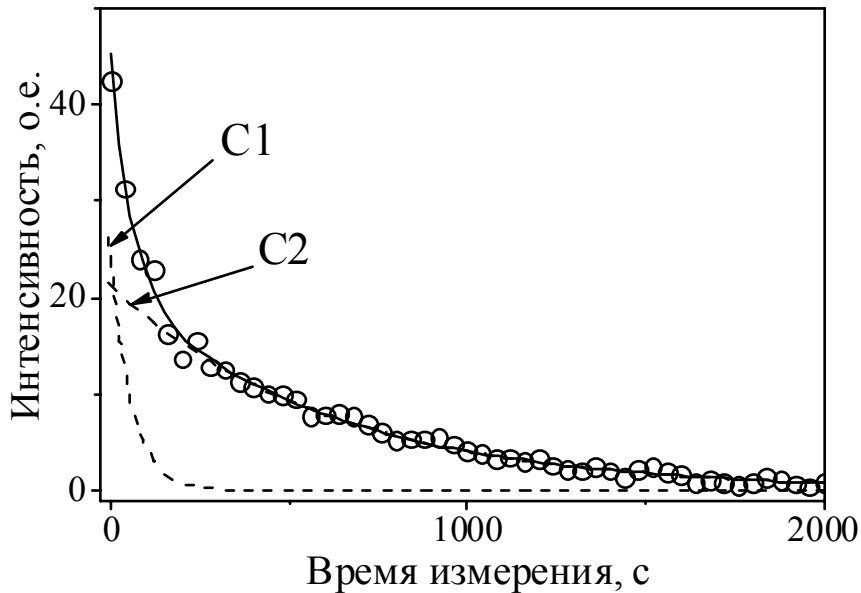


Рисунок 1 – Послесвечение в AlN после  $\beta$ -облучения.

Символы – экспериментальные данные; пунктирные линии – расчетные экспоненциальные компоненты (C1 и C2); сплошная линия – аппроксимирующая кривая.

Анализ формы ТЛ кривых показал (см. таблицу 1), что с увеличением времени  $\tau$  хранения образцов после облучения, интенсивность и светосумма  $S_T$  ТЛ кривых в большей степени уменьшается за счет высвечивания низкотемпературной части термоактивационного пика. Уже через 3 суток положение максимума  $T_{max}$  ТЛ смещается в область высоких температур на  $\approx 40$  К, а полуширина  $\Delta T$  уменьшается на  $\approx 27$  К. В тоже время регистрируется увеличение форм-фактора  $\mu_g$  с 0.46 до 0.52, что в свою очередь указывает на возрастание роли процессов повторного захвата на ловушке в ходе регистрации ТЛ с увеличением  $\tau$ .

Для численного анализа регистрируемых термоактивационных процессов использовалось уравнение общего порядка кинетики [8]:

$$I(T) = s'' \cdot n_0 \cdot e^{-\frac{E_A}{kT}} \cdot \left( 1 + \frac{s'' \cdot (b-1)}{r} \cdot \int_{T_0}^T e^{-\frac{E_A}{k\theta}} \cdot d\theta \right)^{-\frac{b}{b-1}} \quad (1)$$

где  $n_0$  – концентрация электронов на ловушках в начальный момент времени,  $\text{см}^{-3}$ ;  $s''$  – эффективный частотный фактор,  $\text{с}^{-1}$ ;  $E_A$  – энергия активации, эВ;  $k$  – постоянная Больцмана, эВ/К;  $T$  – температура образца, К;  $T_0$  – начальная температура, К;  $b$  – порядок кинетики,  $r$  – скорость нагрева, К/с.

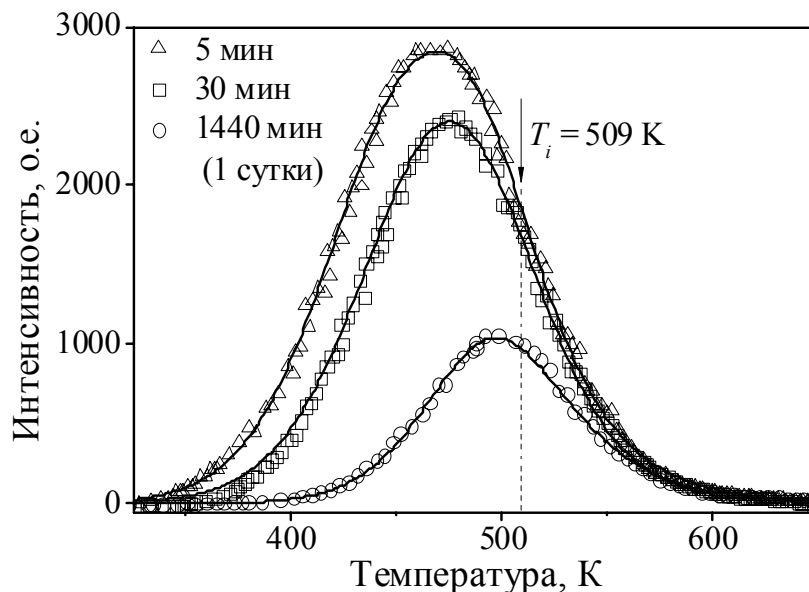


Рисунок 2 – ТЛ кривые, измеренные после различного времени хранения в темноте. Время  $\tau$  указано на рисунке.

Параметры ТЛ кривых  $\beta$ -облученных образцов AlN

$\tau$ , мин	Параметры формы				Кинетические параметры		
	$T_{max}$ , $\pm 3$ К	$\omega$ , $\pm 3$ К	$\mu_g$ , $\pm 0.01$ К	$S_\tau/S_0$	$E_A$ , $\pm 0.01$ эВ	$s''$ , $c^{-1}$	$b$ $\pm 0,02$
0	471	105	0.46	1.00	0.46	$3.7 \times 10^3$	1.33
5	468	103	0.50	0.85	0.48	$6.4 \times 10^3$	1.41
15	476	100	0.48	0.82	0.50	$9.4 \times 10^3$	1.37
30	474	94	0.51	0.66	0.58	$8.5 \times 10^4$	1.61
45	474	93	0.49	0.71	0.55	$3.4 \times 10^4$	1.42
60	480	93	0.49	0.64	0.57	$5.6 \times 10^4$	1.45
120	484	92	0.51	0.60	0.61	$1.4 \times 10^5$	1.57
1440	499	84	0.51	0.25	0.76	$2.9 \times 10^6$	1.70
4320	496	78	0.51	0.18	0.85	$2.7 \times 10^7$	1.87

Анализ ТЛ кривых с использованием уравнения (1) показал возможность аппроксимации экспериментальных зависимостей с высокой степенью точности ( $R^2 \geq 0.997$ ). Результаты приведены в таблице 1. Видно, что с увеличением  $\tau$  растет порядок кинетики  $b$  от 1.33 до 1.87, что согласуется с увеличением значений  $\mu_g$  и повышением роли повторного захвата на ловушке при нагреве облученных образцов. В то же время увеличиваются энергия активации  $E_A$  с 0.46 до 0.84 эВ и эффективный частотный фактор  $s''$  с  $3.7 \times 10^3$  до  $2.7 \times 10^7$   $c^{-1}$ .

Между полученными значениями кинетических параметров  $\lg(s'')$  и  $E_A$  существует линейная связь (см. рисунок 3). При этом величины  $E_A$  и  $s''$  связаны между собой компенсационным соотношением [9]:

$$s'' = s''_0 \exp\left(\frac{E_A}{kT_i}\right). \quad (2)$$

Здесь  $s''_0$  – константа, отражающая энтропийный вклад для системы «ловушки – рекомбинационные центры»;  $T_i$  – изокинетическая температура, соответствующая постоянной скорости протекания кинетических процессов независимо от термодинамического состояния многоловушечной системы.

Оценка изокинетической температуры  $T_i = 509 \pm 10$  К для наблюдаемого компенсационного эффекта в ТЛ монокристаллов AlN. Отметим, что компенсационная связь  $E_A$  и  $s''$  регистрировалась нами ранее в ТЛ монокристаллов  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в полосах свечения 2.4, 3.0 и 3.8 эВ при варьировании дозы  $\beta$ -излучения [10], а также в процессах температурного тушения люминесценции F- и F<sup>+</sup>-центров [Ошибка! Закладка не определена.]. Причем значения  $T_i$  в [10] [Ошибка! Закладка не определена.] были близки к  $T_{max}$  ТЛ пиков. В данной работе также наблюдается, что  $T_i \rightarrow T_{max}$  при увеличении времени  $\tau$ .

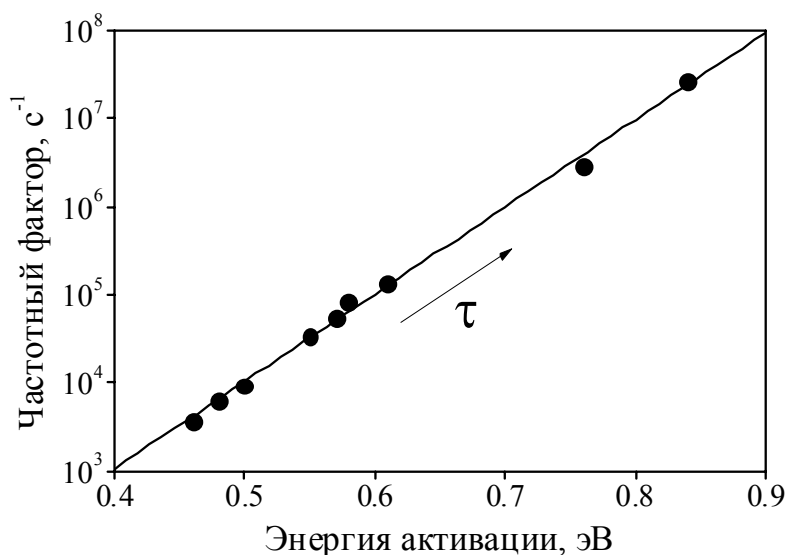


Рисунок 3 – Компенсационная зависимость кинетических параметров ТЛ. Стрелкой указано направление увеличения времени хранения образцов. Символы – значения кинетических параметров, рассчитанные по выр. (1); сплошная линия – аппроксимация с использованием выр. (2).

Наблюдаемые изменения геометрических и кинетических параметров ТЛ кривых могут быть связаны с энергетическим распределением ловушек одного типа, которые и обуславливают регистрируемый ТЛ пик в области 400 – 550 К. При увеличении времени  $\tau$  происходит постепенное высвечивание заполненных ловушек в течение хранения за счет опустошения, в первую очередь, ловушек из низкоэнергетического хвоста распределения.

Вследствие этого наблюдается смещение максимума в высокотемпературную область и уменьшение полуширины ТЛ пика, а также увеличение средней энергии активации термостимулированного процесса.

Отметим, что по данным независимых исследований ТЛ оценки термической глубины ловушек варьируются в диапазоне  $E_A = 0.6 - 0.9$  эВ [**Ошибка! Закладка не определена.**], а по температурной зависимости фотопроводимости  $E_A = 0,67 - 0,85$  эВ [11]. Эти факты также указывают на то, что в температурном диапазоне 400 – 550 К имеет место распределение ловушек одного типа. Таким образом, полученный разброс значений  $E_A$  в настоящей и указанных работах может быть обусловлен различными условиями проведения экспериментов – время хранения между облучением и измерением, скорость нагрева образцов, доза облучения и т.д.

#### **Заключение**

На основании полученных экспериментальных результатов и количественного анализа термоактивационных процессов в  $\beta$ -облученных кристаллах AlN показано, что наблюдаемое устойчивое послесвечение может быть обусловлено опустошением при комнатной температуре двух разных ловушек. Быстрая компонента ( $t_1 \approx 60$  с) связана с мелкими ловушками носителей заряда, активация которых начинается ниже комнатной температуры. Медленная компонента ( $t_2 \approx 600$  с) обусловлена более глубокими центрами захвата, ответственными за формирование низкотемпературной составляющей регистрируемого интегрального ТЛ сигнала в области 400 – 550 К.

Указанная гипотеза согласуется с поведением геометрических параметров регистрируемого ТЛ пика 400 – 550 К при возрастании времени хранения образцов – сдвиг температуры максимума в высокотемпературную область, уменьшение полуширины и увеличение форм-фактора. В пользу предположения свидетельствует также изменение значений кинетических параметров указанного ТЛ пика – рост порядка кинетики и энергии активации. Полученное изменение энергии активации в диапазоне  $E_A = 0.46 - 0.85$  эВ с увеличением времени хранения образцов  $\square = 5$  мин  $\div$  3 суток может быть обосновано с точки зрения энергетического распределения глубоких ловушек.

Впервые обнаружена компенсационная связь энергии активации и эффективного частотного фактора в процессах ТЛ монокристаллов AlN. Показано, что при увеличении времени хранения образцов значение  $T_{max}$  ТЛ пика стремится к изокинетической температуре  $T_i \approx 509$  К.

Высокий суточный фединг ( $\approx 75$  %) в монокристаллах AlN ограничивает их применение для задач персональной дозиметрии, требующих продолжительных временных оценок. Тем не менее, высокая чувствительность AlN к ионизирующим излучениям делает его перспективным материалом для использования в системах и приборах on-line мониторинга радиационной обстановки окружающей среды и экспресс-анализа мощности пучка в клинической радиотерапии.

#### **Список литературы**

- [1] Д.М. Спиридонов, Е.Ю. Белоусова, А.С. Вохминцев, И.А. Вайнштейн // Тезисы докладов «XI Всероссийская молодежная школа-семинар по проблемам физики конденсированного состояния вещества». Екатеринбург: Институт физики металлов УрО РАН. – 2010. – С. 118.
- [2] L. Trinkler, L. Botter-Jensen, B. Berzina // Radiation Protection Doimetry. – 2002. – 100, No 1-4. – P. 313-316.
- [3] L.Trinkler, P.Christensen, N.A.Larsen, B.Berzina // Journal of Physics: Condensed Matter – 2001. – 13. – P. 8931-8938.
- [4] E.N. Mokhov, O.V. Avdeev, I.S. Barash, T.Yu. Chemekova, A.D. Roenkov, A.S. Segal, A.A. Wolfson, Yu.N. Makarov, M.G. Ramm and H. Helava // Journal of Crystal Growth – 2005. – 281. – P. 93–100.
- [5] А.С. Вохминцев, И.А. Вайнштейн, Д.А. Бекетов, Д.М. Спиридонов, А.Р. Бекетов, Д.В. Харитонов // Nanosystems, Nanomaterials, Nanotechnologies. – 2011. – Т. 9, вып. 2. – С. 365-374.
- [6] L. Trinkler, B. Berzina, S. C. Shi, L. C. Chen, M. Benabdesselam, and P. Iacconi // Phys. Stat. Sol. – 2005. – 2, № 1. – P. 334–338.
- [7] В.А. Солтамов, И.В. Ильин, А.А. Солтамова, Д.О. Толмачев, Е.Н. Мохов, П.Г. Баранов // Физика твердого тела – 2011. – том 53, вып. 6 – С. 1121-1125.
- [8] R. Chen, S.W.S. McKeever // Theory of Thermoluminescence and Related Phenomena. Singapore: World Scientific. – 1997. – P. 576.
- [9] I.A. Weinstein, V.S. Kortov, A.S. Vokhmintsev // Journal of Luminescence – 2007. – 122-123. – P. 342–344.
- [10] I.A. Weinstein, A.S. Vokhmintsev, V.S. Kortov // Radiation Measurements – 2008. – 43. – P. 259–262.
- [11] Kubatova J., Pasternak J., Zelezny V. / Proc. of the conf. «Mixed crystals», 1975. P. 119.

## **ПЛУТОНИЙ В ПОЧВЕННО-РАСТИТЕЛЬНОМ ПОКРОВЕ ГОЛОВНОЙ ЧАСТИ ВОСТОЧНО-УРАЛЬСКОГО РАДИОАКТИВНОГО СЛЕДА**

Л.Н. Михайловская, Л.В. Лобанова, О.В. Рукавишникова, Е.В. Глухова  
Институт экологии растений и животных УрО РАН, г. Екатеринбург, Россия

Восточно-Уральский радиоактивный след (ВУРС), образовался в 1957 году в результате аварии на производственном объединении «Маяк», в ходе которой в атмосферу было выброшено около  $74 \cdot 10^{15}$  Бк радиоактивных веществ. В результате произошло загрязнение территории Челябинской, Свердловской и Тюменской областей общей площадью 23000 км<sup>2</sup>. Позднее, в 1967 г., эту же территорию загрязнили принесенные ветром

радиоактивные донные отложения оз. Карачай – технологического водоема ПО «Маяк» [1]. В аварийных выпадениях 1957 г. основным загрязнителем был  $^{90}\text{Sr}$ , а в 1967 г. –  $^{137}\text{Cs}$ . В настоящее время радиоактивное загрязнение ВУРСа обусловлено долгоживущими радионуклидами  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$ , а их интегральные запасы в почвах составляют  $571.2 \cdot 10^{12}$  Бк,  $66.1 \cdot 10^{12}$  Бк и  $1.675 \cdot 10^{12}$  Бк соответственно [2]. Известно, что головная часть ВУРСа и ее западная периферия загрязнены преимущественно  $^{90}\text{Sr}$ , поступившим в почвенный покров в 1957 г в ходе аварии. На восточной периферии, в составе радиоактивного загрязнения почв преобладает  $^{137}\text{Cs}$ , донных отложений с берегов оз. Карачай [3].

Цель работы состояла в изучении пространственного распределения  $^{239,240}\text{Pu}$  в почвенно-растительном покрове головной части ВУРСа, оценке вклада двух аварий в формирование его загрязнения и особенностей накопления  $^{239,240}\text{Pu}$  травянистыми растениями.

### МАТЕРИАЛ И МЕТОДЫ

Исследования проводили в 2003-2010 гг., в Челябинской области Российской Федерации на головной части ВУРСа протяженностью около 25 км. Обследованная территория Восточно-Уральского радиоактивного следа, относится к Зауральской лесостепи. В почвенном покрове преобладают различные подтипы серых лесных почв и черноземы; встречаются разновидности бурых и оторфованных почв. На всей территории ВУРСа имеются участки с почвенным покровом, нарушенным в результате поставарийных реабилитационных мероприятий. В ходе проведения работ было заложено три трансекты (рис.1). Центральная – совпала с осью следа, а западная и восточная – проходили по соответствующим перифериям. На однородных по мезорельефу реперных участках расположенных на разном расстоянии от эпицентра аварии и охватывающих основные типы экосистем закладывали почвенные разрезы для отбора проб. Как правило, почвенные пробы отбирали слоями мощностью 5-10 см до глубины 50 см. Общее содержание радионуклидов в 50-см почвенном слое, нормированное на площадь, назвали запасом. В непосредственной близости от разрезов в 2-3 повторностях отбирали образцы надземной массы Разнотравья, доминирующих или часто встречающихся видов растений. При изучении внутривидовой изменчивости накопительной способности растений на ограниченной территории ВУРСа, был проведен специальный отбор проб (в 5 повторностях) разных видов лугового разнотравья. Фоновые участки, на которых также отбирали почвенные и растительные пробы, располагали вне зоны аварийного выброса 1957 г. примерно в 30-40 км от западной границы ВУРСа. Все пробы высушивали до воздушно-сухого состояния, а затем озоляли при  $t\ 450^\circ\text{C}$ .

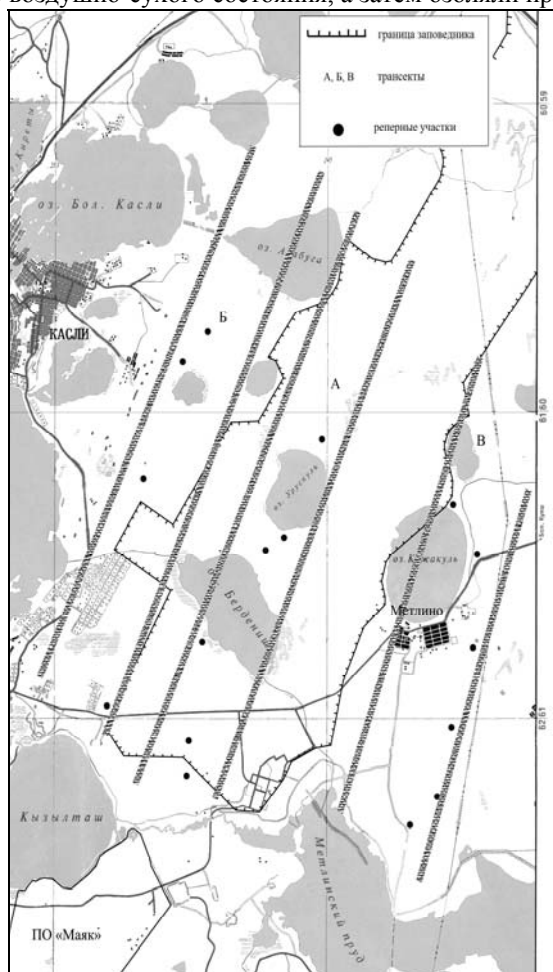


Рис.1. Схема района исследований

Содержание изотопов плутония в образцах определяли радиохимическим методом. Вскрытие образцов проводили смесью азотной и соляной кислот; затем осаждали гидроксиды железа, растворяли их и разделяли в колонках с ионообменной смолой типа AG 1-X4. Плутоний элюировали, электролитически осаждали на металлических дисках и определяли содержание его изотопов на  $\alpha$ -спектрометре типа Alpha Analyst фирмы “Canberra

Packard” (США) с полупроводниковыми детекторами (PIPS), программным обеспечением GENIE-2000 и пределом обнаружения 0.001 Бк. Полное описание методики приведено в работе [4].

**РЕЗУЛЬТАТЫ ИССЛЕДОВАНИЙ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ**

Результаты проведенных исследований показали, что максимальный запас <sup>239,240</sup>Pu – 80 кБк/м<sup>2</sup> отмечен в почвах центральной трансекты, на участках приближенных к эпицентру аварии (рис. 2). В пределах головной части следа по мере удаления от источника загрязнения он снижался до 10 кБк/м<sup>2</sup>. На западной, запас <sup>239,240</sup>Pu составлял 1-0.3 кБк/м<sup>2</sup>, а на восточной 5-0.3 кБк/м<sup>2</sup>. Характер пространственного распределения запасов <sup>239,240</sup>Pu в почвах удовлетворительно аппроксимируется экспоненциальной функцией типа  $y=ae^{-bx}$ , где x – расстояние от эпицентра аварии, а и b – эмпирические коэффициенты.

Изучение пространственного распределения радионуклидов по компонентам основных типов наземных экосистем проводили на территории центральной оси следа. Были обследованы лесные и луговые экосистемы, расположенные на сопредельных участках. Запас <sup>239,240</sup>Pu в 40 см почвенном слое лесной экосистемы примерно в два раза ниже, чем в луговых (табл. 1). Различия достоверны при P=0.05, t<sub>эксп.</sub>=9.39, t<sub>теор.</sub>=3.18. Лесное и луговое разнотравье загрязнено <sup>239,240</sup>Pu в равной степени, а его содержание в древесных растениях на порядок выше. Доля <sup>239,240</sup>Pu, депонированного надземной массой растений, очень мала. Так, в растительном покрове лесных экосистем она составляет лишь 0.08%, а луговых – 0.002% от суммарного их содержания в почвенно-растительном покрове.

В почвах лесных и луговых экосистем сходный характер вертикального распределения <sup>239,240</sup>Pu. Его максимальная удельная активность обнаруживается в слое 0-5 см и закономерно снижается с глубиной (рис. 3). Максимальная плотность загрязнения, рассчитанная с учетом удельного веса почвы, смещена в слой 5-10 см. Однако в луговой экосистеме <sup>239,240</sup>Pu оказался более подвижен по сравнению с лесной. Так через 50 лет после аварии в верхнем корнеобитаемом слое (0-20 см) лесной экосистемы находится 90% от общего его запаса в почвенном профиле, а луговой – 70%.

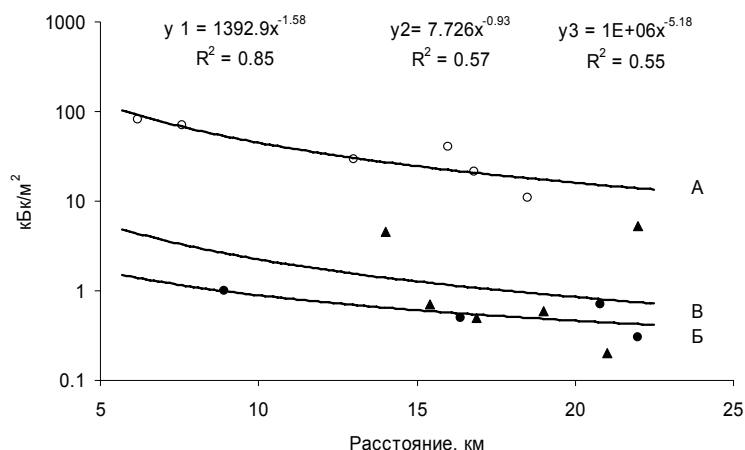


Рис. 2. Запас <sup>239,240</sup>Pu в почвах головной части ВУРСа. Трансекты: А – центральная, Б – западная, В – восточная.

Таблица 1. Запас <sup>239,240</sup>Pu компонентах экосистем разного типа, кБк/м<sup>2</sup>.

Экосистема	Компонент	Запас
Лес	Лесное разнотравье	0.001±0.0003
	Древесные растения	0.02±0.0002
	Почва, 0-40 см	25.0±6.0
Луг	Луговое разнотравье	0.001±0.0003
	Почва, 0-40 см	54.8±15.1

Для количественной оценки вкладов двух событий в загрязнение обследованной территории плутонием использовали запасы радионуклида на реперных участках и известные величины изотопного отношения <sup>238</sup>Pu/ <sup>239,240</sup>Pu характеризующие аварийные выпадения [5]. Решая уравнение (1), рассчитали вклад 2-х аварий в загрязнение плутонием почвенного покрова:

$$K_1 (A-x) + K_2 x = K_3 A, \tag{1}$$

где величина изотопного отношения <sup>238</sup>Pu/ <sup>239,240</sup>Pu: K<sub>1</sub> – 0.0115 для аварийных выпадений 1957 г., K<sub>2</sub> – 0.088 для донных отложений оз. Карачай, K<sub>3</sub> – определенная непосредственно в образцах почв. Запасы <sup>239,240</sup>Pu (кБк/м<sup>2</sup>): А – на обследованных участках за вычетом глобального фона, x – для аварийных выпадений 1957 г., (A-x) – для ветрового сдува донных отложений с берегов оз. Карачай.

Проведенные расчеты показали, что плутониевое загрязнение почвенного покрова центральной трансекты сформировано преимущественно (88.8%) аварийными выпадениями 1957 г. В результате ветрового переноса донных отложений с берегов оз. Карачай поступило 11%, а доля глобальных выпадений не превышала 0.2%. Вклад двух событий в загрязнение периферии следа плутонием рассчитать этим способом не представляется возможным, т.к. удельная активность <sup>238</sup>Pu в них, в большинстве случаев, ниже предела обнаружения.



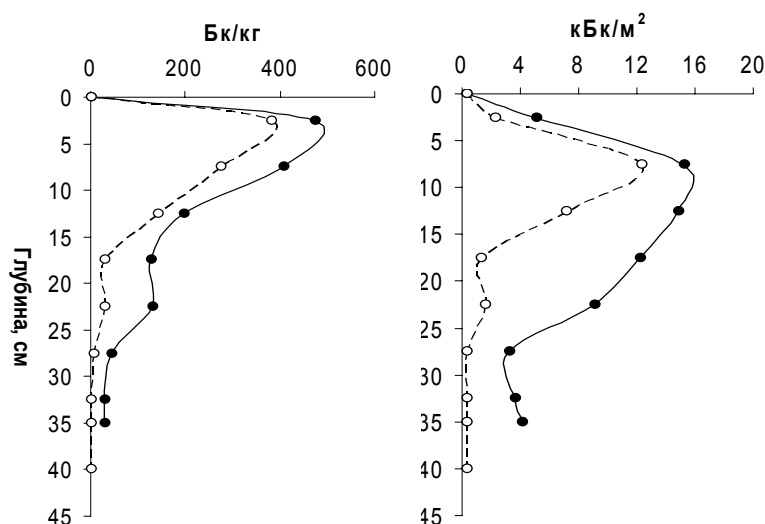


Рис. 3. Вертикальное распределение  $^{239,240}\text{Pu}$  в почвах. Экосистемы:  $\bigcirc$  – лес,  $\bullet$  – луг.

Травянистые растения в наземных экосистемах вовлекают в процессы биологического круговорота химические элементы, в том числе и техногенные радионуклиды. В настоящее время накоплен обширный материал, характеризующий особенности поглощения радионуклидов растениями. Известно, что поступление в фитомассу зависит от физико-химических свойств радионуклидов, почвенно-климатических факторов и биологических особенностей отдельных видов. Однако чаще всего эти исследования посвящены  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и в значительно меньшей степени  $^{239,240}\text{Pu}$ . При изучении накопительной способности растений по отношению к плутонию мы учитывали широкое видовое разнообразие растительных сообществ и изменение с расстоянием плотности загрязнения почвенного покрова. На первых этапах исследований оценили внутривидовую изменчивость накопительной способности растений. Отмечается ее высокая изменчивость в пределах одной популяции для растений одного вида (табл.2). Об этом свидетельствуют высокие коэффициенты вариации ( $CV$ ), удельная активность радионуклида в надземной массе одного вида растений может варьировать в пределах порядка величин. В накоплении  $^{239,240}\text{Pu}$  надземной массой растений произрастающих на ограниченной территории наблюдается и видовая специфичность. Так максимальное его содержание 3.23 Бк/кг обнаружено в клевере среднем, а в чине луговой оно в 25 раз ниже.

Таблица 2. Статистические характеристики удельной активности  $^{239,240}\text{Pu}$  в надземной массе растений на ограниченной территории ВУРСа.

Вид	$\bar{x} \pm m_{\bar{x}}$ (min-max), Бк/кг	$CV$ , %
Клевер средний	$3.23 \pm 0.79$ (0.56-5.76)	58.8
Чина луговая	$0.13 \pm 0.06$ (0.06-0.13)	77.7
Крапива двудомная	$0.78 \pm 0.37$ (0.14-1.78)	82.4
Пустырник пятилопастный	$0.32 \pm 0.14$ (0.02-0.69)	76.9
Кострец безостый	$0.58 \pm 0.19$ (0.27-1.2)	62.5

Широкий диапазон уровней загрязнения на обследованной территории позволил оценить закономерности поступления  $^{239,240}\text{Pu}$  в растения в зависимости от их запасов в почвах. На рисунке 4 такая зависимость показана на примере широко распространенного вида крапивы двудомной для  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{239,240}\text{Pu}$ . Видно, что удельная активность изученных радионуклидов в надземной массе изменяется не прямо пропорционально уровню загрязнения почв, а в соответствии со степенной функцией вида  $y = a x^b$ , где  $x$  – запас радионуклидов в почве  $\text{кБк/м}^2$ ,  $a$  и  $b$  – эмпирические коэффициенты. Аналогичные данные получены и для других видов травянистых растений [6].

Оказалось, что на обследованной территории наблюдается высокая вариабильность коэффициентов перехода в зависимости от видовых особенностей и свойств радионуклидов. Так среди исследованных травянистых растений наибольшей накопительной способностью по отношению к  $^{239,240}\text{Pu}$  обладает клевер средний, к  $^{90}\text{Sr}$  – клевер средний и медуница мягкая,  $^{137}\text{Cs}$  – медуница мягкая и тысячелистник. Во всех случаях аккумулирующая способность растений по отношению к  $^{239,240}\text{Pu}$  ниже чем, для  $^{137}\text{Cs}$  на 1-2, а  $^{90}\text{Sr}$  на 3-4 порядка величин. В целом, поступление радионуклидов в растения хорошо коррелируется с подвижностью радионуклидов в почвах, которая, как известно, возрастает в ряду  $^{239,240}\text{Pu} \leq ^{137}\text{Cs} \ll ^{90}\text{Sr}$  [2].

В условиях широкого диапазона загрязнения почв целесообразно использовать для характеристики накопительной способности растений наиболее информативный показатель - коэффициент перехода ( $\text{м}^2/\text{кг} \cdot 10^{-3}$ ). В таблице 3 приведены коэффициенты перехода  $^{239,240}\text{Pu}$  в надземную массу травянистых растений, произрастающих на территории головной части ВУРСа. Для сравнения здесь же приведены данные для  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$ .

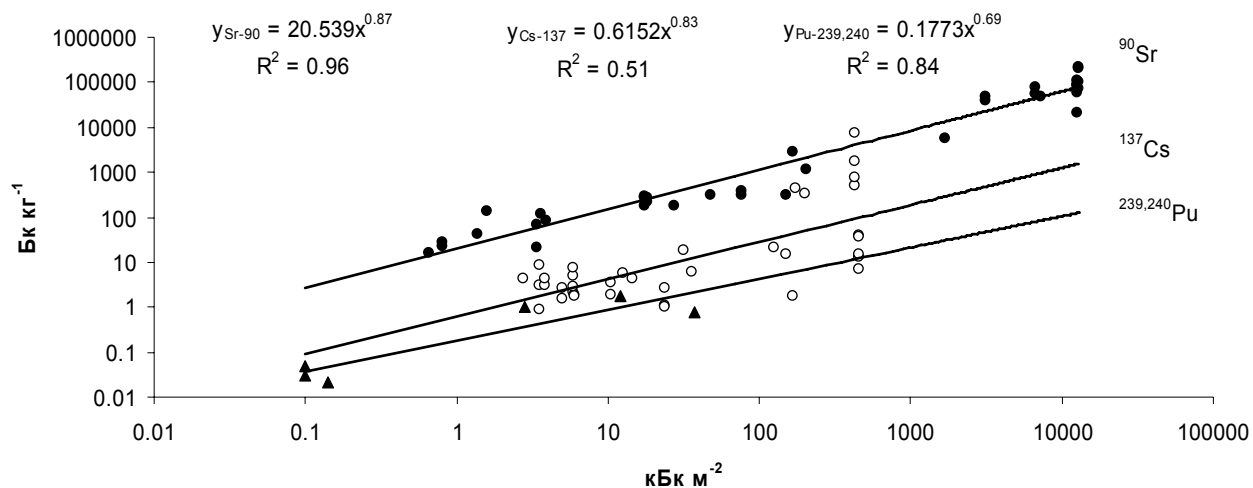


Рис. 4. Накопление радионуклидов крапивой двудомной в зависимости от плотности загрязнения почв.

Таблица 3. Коэффициенты перехода ( $\text{м}^2/\text{кг} \cdot 10^{-3}$ ) радионуклидов в травянистые растения на территории головной части ВУРСа.

Вид	Коэффициенты перехода		
	$^{239,240}\text{Pu}$	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$
Клевер средний	$0.053 \pm 0.012$	$21.8 \pm 6.1$	$0.35 \pm 0.08$
Чина луговая	$0.002 \pm 0.001$	$3.1 \pm 1.4$	$0.18 \pm 0.14$
Крапива двудомная	$0.023 \pm 0.015$	$8.7 \pm 1.6$	$0.45 \pm 0.25$
Пустырник пятилопастный	$0.005 \pm 0.002$	$1.2 \pm 0.2$	$0.02 \pm 0.005$
Лопух паутинистый	$0.018 \pm 0.017$	$0.6 \pm 0.3$	$0.03 \pm 0.01$
Бодяк щетинистый	$0.007 \pm 0.002$	$7.7 \pm 1.7$	$0.30 \pm 0.13$
Тысячелистник	$0.012 \pm 0.007$	$5.1 \pm 3.5$	$0.95 \pm 0.31$
Кострец безостый	$0.030 \pm 0.004$	$0.6 \pm 0.1$	$0.02 \pm 0.007$
Щавель конский	$0.015 \pm 0.007$	$1.2 \pm 0.2$	$0.02 \pm 0.004$
Медуница мягкая	$0.027 \pm 0.015$	$25.2 \pm 1.8$	$0.91 \pm 0.06$

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Изучение пространственного распределения  $^{239,240}\text{Pu}$  на территории ВУРСа показало, что в пределах головной части следа и на его периферии изменение запасов радионуклида с увеличением расстояния от эпицентра аварии удовлетворительно аппроксимируется степенной функцией. При этом плутониевое загрязнение почв головной части на 88% сформировано аварийными выпадениями в 1957 г., ветровой сдув с берегов оз. Карачай привнес лишь 11% от общего запаса  $^{239,240}\text{Pu}$  в почвах.

В широком диапазоне загрязнения почв  $^{239,240}\text{Pu}$  его поступление в травянистые растения изменяется в соответствии со степенной функцией. Накопительная способность растений по отношению к  $^{239,240}\text{Pu}$  характеризуется высокой внутривидовой изменчивостью и видовой специфичностью. По сравнению с другими радионуклидами  $^{239,240}\text{Pu}$  характеризуется очень низким содержанием в надземной массе растений. Интенсивность поглощения радионуклидов растениями убывает в ряду  $^{90}\text{Sr} \geq ^{137}\text{Cs} > ^{239,240}\text{Pu}$ .

Работа выполнена при финансовой поддержке Программы Уральского Отделения РАН ориентированных фундаментальных исследований, выполняемых в рамках соглашений о сотрудничестве с государственными корпорациями и научно-производственными объединениями, проект № 11-4-01-ЯЦ.

## ЛИТЕРАТУРА

1. Экологические последствия радиоактивного загрязнения на Южном Урале. М.: Наука, 1993. 336 с.
2. Позолотина В.Н., Молчанова И.В., Караваева Е.Н. и др. // Современное состояние наземных экосистем Восточно-Уральского радиоактивного следа: уровни загрязнения, биологические эффекты. Екатеринбург: Голицынский, 2008. 203 с.
3. Михайловская Л.Н., Молчанова И.В., Караваева Е.Н. и др. Радиоэкологическое исследование почвенного покрова Восточно-Уральского государственного заповедника и сопредельных территорий // Радиационная биология. Радиоэкология. 2011. Т.51, №4. С.476-482.
4. Chen Q. et al. Determination of plutonium in environmental samples by controlled valence in anion exchange // J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, articles. 1993. V.172. N 2. P. 281-288.
5. Aarkrog A., Dahlgaard H., Nielsen S.P. et al. Radioactivity inventories from the Kyshtym and Karachay accidents: estimates based on soil samples collected in the South Urals (1990-1995). // Sci. of the Total Environmen., 1997, v. 201, p. 137-154.
6. Караваева Е.Н., Михайловская Л.Н., Молчанова И.В. Позолотина В.Н. Накопление  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{137}\text{Cs}$  растениями из почв, загрязненных в результате эксплуатации предприятий ядерно-энергетического комплекса // Проблемы биогеохимии и геохимической экологии, 2010. №1 (2). С. 85-90.

## ПОДЗЕМНАЯ ГАЗИФИКАЦИЯ В МЕСТАХ ПРОВЕДЕНИЯ ПОДЗЕМНЫХ ЯДЕРНЫХ ВЗРЫВОВ (ПЯВ) НА БЫВШЕМ СЕМИПАЛАТИНСКОМ ИСПЫТАТЕЛЬНОМ ПОЛИГОНЕ (СИП)

Романенко В.В., Субботин С.Б., Лукашенко С.Н.

*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Казахстан, Курчатов*

В настоящее время прошло более 20 лет после проведения последнего ядерного испытания на бывшем семипалатинском испытательном полигоне. Как показывают многолетние исследования, проведение подземных ядерных взрывов в ряде случаев послужили причиной возникновения скрытых подземных процессов деструкции горных пород.

Исследование этого вопроса начато институтом радиационной безопасности и экологии в 2007 году.

На СИП ПЯВ проводились на двух испытательных площадках – «Балапан» и «Сары-Узень» (Рисунок 1). Площадка «Балапан» расположена в пределах СИП, в его юго-восточной части, в 100 км от г. Курчатова., к западу от нее на расстоянии около 85 км находится испытательная площадка «Сары-Узень».

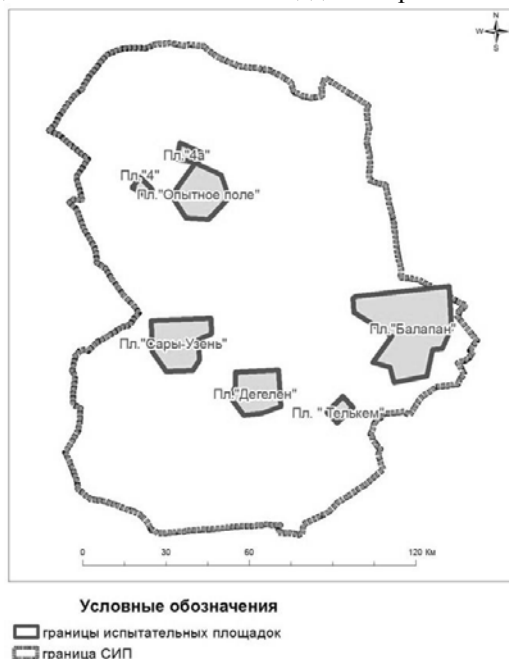


Рисунок 1. Схема расположения испытательных площадок на СИП

На площадке «Балапан» проведены ПЯВ в 106 «боевых» скважинах. Глубина заложения заряда – в среднем 500 метров.

На площадке «Сары-Узень» подземные ядерные испытания проводились в 24 «боевых» скважинах. Глубина заложения зарядов, в среднем около 250 метров.

Ранее проведенные исследования показали, что протекание процессов безкислородной деструкции в блоках горных пород происходит в результате влияния наличия трех основных факторов: наличия углистого материала в горных породах, наличия подземных вод и высоких температур.

В результате протекания процессов газификации углесодержащих горных пород без доступа воздуха могут образоваться следующие газы: CO, H<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> и др.

Анализ почвенного воздуха на приустьевых площадках «боевых» скважин на площадке «Балапан» показал наличие повышенных концентраций горючих газов, которые характерны для процессов подземной газификации. Далее было установлено, что процессы газификации горных пород в местах расположения выявленных «критических» скважин продолжаются и имеют относительно стабильный характер.

Анализ архивных данных показал что площадка «Сары-Узень» имеет схожие геологическое строение и гидрогеологические условия. Отмечается наличие залежей углистых пород, которые представлены в основном горючими сланцами. В связи с этим нельзя исключать возможности возникновения аналогичных процессов подземного горения углистых пород, как и на площадке «Балапан».

В данной работе было продолжено изучение процессов подземной газификации горных пород в местах проведения подземных ядерных испытаний, для этого проводились следующие работы:

- Выявление возможных «газящих» скважин на площадке «Сары-Узень».
- Изучение динамики концентрации ряда газов в почвенном воздухе приустьевых площадок скважин.
- Уточнение особенностей поступления газов из блоков горных пород на дневную поверхность, на приустьевых площадках скважин.

Отбор проб проводился с помощью накопительных емкостей, объемом 10 л, снабженных патрубками для откачки накопленного газа. Срок выстаивания емкостей не менее суток. Отобранные пробы анализировались с помощью газоанализаторов Сенсис 200 и Анкат 7664М.

Для выявления возможных «газящих» скважин на площадке «Сары-Узень» проводился отбор проб почвенного воздуха проводился на приустьевых площадках. Для определения фоновых концентраций, накопительные емкости устанавливались на территории испытательной площадки на значительном удалении от боевых скважин не менее 500 метров.

По результатам работ получены фоновые значения концентрации метана, оксида углерода, водорода, сероводорода и сернистого ангидрида которые находились на уровнях ниже детектируемых. Концентрация диоксида углерода составила 0,002%.

По результатам обследования только на трех скважинах выявлены повышенные концентрации водорода. На 14 скважинах были выявлены повышенные концентрации метана (102, 104, 109, 110, 111, 125, 129, 133, 215, 2613; 2803, X-1, X-2; X-4). Из них скважины X-1, X-2 и X-4 не являются объектами проведения ПЯВ, по этим объектам нет данных о проведении здесь каких-то испытаний. Повышенные концентрации метана на этих объектах могут быть связаны с возможным проведением здесь химических взрывов большой мощности. Таким образом, на площадке «Сары-Узень» обнаружены признаки подземной газификации углистых пород не только в местах проведения ПЯВ но и на других объектах где возможно были проведены химические взрывы большой мощности.

Мониторинг концентрации газов на площадке «Балапан» проводился на «газящих» скважинах выявленных по результатам предыдущих работ. Отбор проб почвенного воздуха на приустьевых площадках скважин осуществлялся ежемесячно по двум точкам. Первоначально установленное расположение точек отбора проб не менялось на протяжении мониторинга. На скважине 1010 одной из точек отбора был оголовок скважины, из которого выделяется газ. Особенность скважины заключается в том, что газы, образуясь на большой глубине, проходят через затрубное пространство этой скважины и проникают в атмосферный воздух.

На динамику процессов газовой выделения влияет очень много факторов, но условно их можно разбить на две группы. Во-первых, образование газов происходит на глубине в результате химических процессов, которые определяют состав газа и его концентрацию. Такие процессы условно назовем «первичные» факторе, которые изначально формируют характер газовой выделения. Образовавшиеся потоки газа по газопроницаемым зонам проходят сквозь толщу горных пород, а затем проникают в почвенный воздух. Физико-химические свойства горных пород, так или иначе, влияют на скорость прохождения и состав потоков газа, а климатические факторы оказывают воздействие на газы, которые уже проникли в почвенный воздух. Такое комплексное влияние условно назовем «вторичные» факторы. На поток газа выделяющегося из оголовка скважины «вторичные» факторы оказывают существенно меньшее влияние, чем на газы, которые проникают в почвенный воздух. В связи, с чем параметры потока на оголовке скважины 1010 более близко отражают процессы, происходящие на глубине.

Согласно результатам газового мониторинга в большинстве случаев характер процесса газовой выделения на «критических» скважинах носит индивидуальный характер. В целом по результатам газового мониторинга можно отметить, что концентрация диоксида углерода, сернистого ангидрида и водорода в почвенном воздухе скважин изменялась на три порядка, метана и оксида углерода на два порядка, а сернистого ангидрида на четыре.

Эпизодически наблюдается наличие углеводородов в пробах почвенного воздуха. В газе, выделяющемся из оголовка скважины 1010, повышенная концентрация углеводородов наблюдается постоянно, с концентрацией на три порядка большей по величине, чем в почвенном воздухе (Рисунок). Более того, в газе, выделяющемся из оголовка скважины 1010 за время мониторинга присутствовали практически все из определяемых газов в гораздо больших концентрациях, чем в пробах почвенного воздуха, что свидетельствует о меньшем влиянии комплекса «вторичных» факторов.

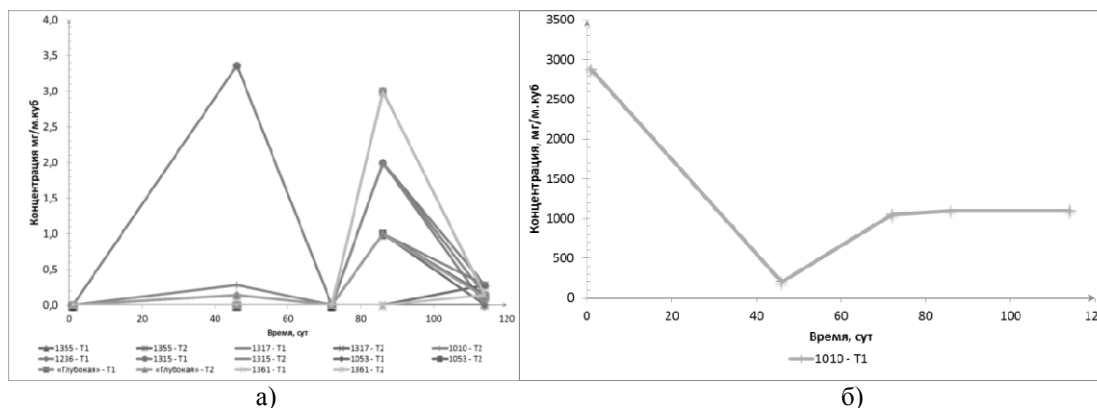


Рисунок 2. Результаты мониторинга. а) почвенный воздух; б) оголовок скважины 1010

Эпизодическое появление некоторых газов в пробах почвенного воздуха связано с воздействием вторичного фактора. Не исключено, что в области приустьевых площадок «газящих» скважин присутствуют своеобразные промежуточные буферных зоны в толще горных пород, где скапливается газ. Предположительно, по мере накопления в них газа происходит рост давления до определенного порога, после превышения, которого происходит «разрядка» - выброс газа, чем и объясняются наличия резкого повышения/понижения концентрации газов.

Согласно имеющимся представлениям, газы, образуясь на глубине, проникают на поверхность по газопроницаемым структурам. Для того чтобы выяснить расположение таких газопроводящих зон на приустьевых площадках критических скважин было принято решение провести площадную газовую съемку. Съемка проводилась путем отбора проб почвенного воздуха по сетке с шагом 50 метров. Площадь, охватываемая газовой съемкой на каждой скважине, составляла 500\*500 м. В полученных пробах проводились измерения концентрации метана (CH<sub>4</sub>) и диоксида углерода (CO<sub>2</sub>).

По результатам работ на приустьевых площадках скважин выявлены участки повышенных концентраций метана (Рисунок3) и диоксида, площади, которых в ряде случаев превышают область исследования. Можно отметить, что газопроницаемые структуры расположены не только вблизи устья скважин, но и на расстоянии более 350 метров, более того, точки с максимальной концентрацией, как правило, находятся не в непосредственной близости от «боевых» скважин, а на расстоянии до 200 м.

Таким образом, участки возможной опасности могут располагаться не только возле оголовка скважины, но и на значительном удалении

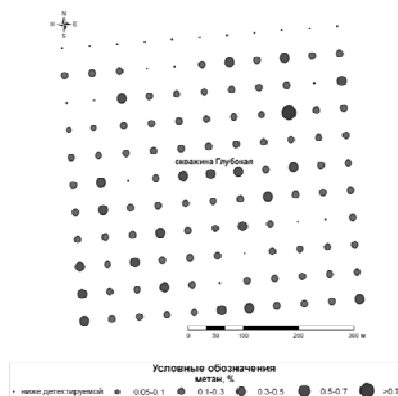


Рисунок 3. Результаты площадного газового обследования. Скважина "Глубокая"

Как уже было сказано по данным результатов многолетнего обследования оголовка скважины 1010 отмечается наличие большинства определяемых газов, при этом концентрации газов максимальны по сравнению с концентрациями, полученными в почвенном воздухе на других скважинах на площадках «Балапан» и «Сары-Узень».

Сравнение концентраций газов, измеренных в потоке исходящем непосредственно из оголовка скважины 1010 и почвенном воздухе на приустьевой площадке этой скважины показывает, что разница концентраций метана и водорода достигает почти двух порядков, а таких газов, как оксид углерода, сероводород и сернистый ангидрид в почвенном воздухе вообще не наблюдается. Скорей всего это связано с влиянием комплекса факторов, определяющих процесс прохождения газов через толщу горных пород, которое осложнено фактом возможного взаимодействия с подземными водами, поэтому эти газы будут являться наименее информативными показателями. Из этого следует, что мониторинг метана и водорода в почвенном воздухе будет наиболее информативным.

По результатам газового мониторинга проведен анализ данных, в котором рассматривалась связь показаний между двумя точками на одной площадке скважины, и таким образом косвенно оценивалось воздействие «вторичного» фактора ( Установлено, что на скважине «Глубокая» по 4 газам имеется хорошая корреляция. Это может быть объяснено тем, что вся приустьевая площадка скважины представляет собой область газопроницаемой структуры. По результатам газовой съемки эта область составляет не менее 450x500 м<sup>2</sup>. Вполне вероятно, что образование обширной зоны разгрузки газов на этой скважине связано с прорывом газов и взрывом, который произошел в 1992 году . Предполагается, что в настоящее время на скважине «Глубокая» происходит плавная разгрузка недр от газов.

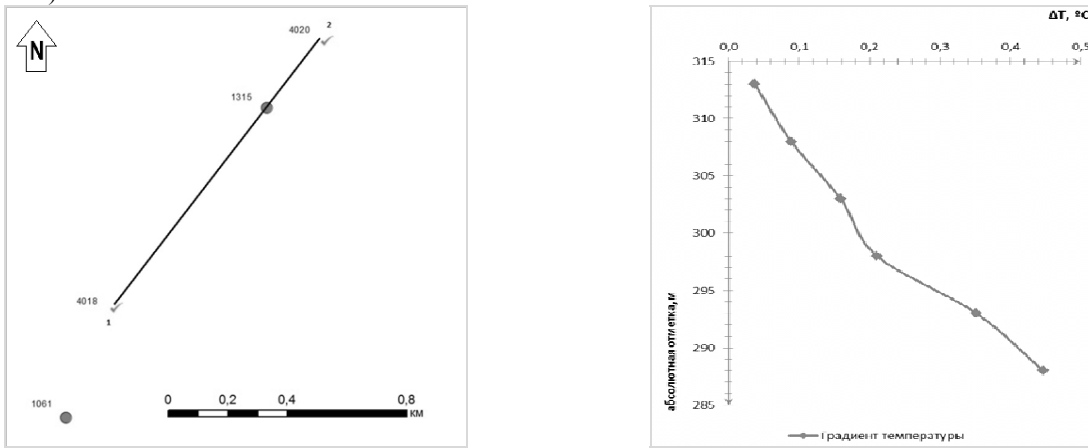
**Таблица 11.** Установлено, что на скважине «Глубокая» по 4 газам имеется хорошая корреляция. Это может быть объяснено тем, что вся приустьевая площадка скважины представляет собой область газопроницаемой структуры. По результатам газовой съемки эта область составляет не менее 450x500 м<sup>2</sup>. Вполне вероятно, что образование обширной зоны разгрузки газов на этой скважине связано с прорывом газов и взрывом, который произошел в 1992 году . Предполагается, что в настоящее время на скважине «Глубокая» происходит плавная разгрузка недр от газов.

Таблица 11. Корреляционные коэффициенты, отражающие схожесть динамики газовыделения в различных точках отбора почвенного воздуха

Скважина	Газ				Скважина	Газ			
	H <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	SO <sub>2</sub>		H <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	SO <sub>2</sub>
1355	0,61	- 0,14	0,50	-	1315	0,51	- 0,04	0,89	-
1317	0,78	0,99	0,08	- 0,25	1053	0,83	0,46	0,53	-

Скважина	Газ				Скважина	Газ			
	H <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	SO <sub>2</sub>		H <sub>2</sub>	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>	SO <sub>2</sub>
1010	- 0,43	- 0,34	- 0,34	-	"Глубокая" "	0,87	0,94	0,89	0,99
1236	- 0,44	- 0,26	0,04	-	1361	- 0,31	0,13	0,95	- 0,11

Ранее установлено, что центральные зоны ПЯВ могут являться долговременными источниками термальной активности. Протекание процессов газификации также обусловлено выделением тепла за счет протекания экзотермических реакций. Для оценки тепловых параметров в местах проведения ЯВ был выбран метод прямых измерений. Для этого проводились термокаротажные работы в гидрогеологических скважинах на испытательных площадках «Балапан» и «Сары-Узень». На данном этапе работ для измерений использовались скважины, которые были ранее пробурены как в советское время, так и в наши дни для других задач. Для получения сравнительных данных проведены термокаротажные работы в ГГС площадки «Новая», где ЯВ не проводились. Наиболее удачно с точки зрения оценки градиента температуры в подземных водах после прохождения зоны влияния боевой скважины расположены гидрогеологические скважины 4018 и 4020 на площадке «Балапан». Эти скважины располагаются в районе «боевой» скважины 1315, которая в результате ранее проведенных исследований отнесена к газящим. По этим скважинам (4018 и 4020) построен профиль, по которым оценивался градиент температуры в подземных водах (Рисунок4).



а) 4018 и 4020 – гидрогеологические скважины, 1315 и 1061 «боевые» скважины площадки «Балапан»

б)

Рисунок 4. Исследование градиента температуры на участке скважины 1315. а) схема расположения скважин; б) градиент температуры на участке 4018 – 4020

Согласно полученным данным на участке расположения скважины 1315 градиент температуры в подземных водах положительный и возрастает с глубиной. Максимальное значение составляет 0,45 градуса. Это может свидетельствовать о наличии подземного источника тепла.

По результатам исследований температуры в гидрогеологических скважинах на площадке «Сары-Узень» были установлены повышенные температуры подземных вод (Рисунок5).

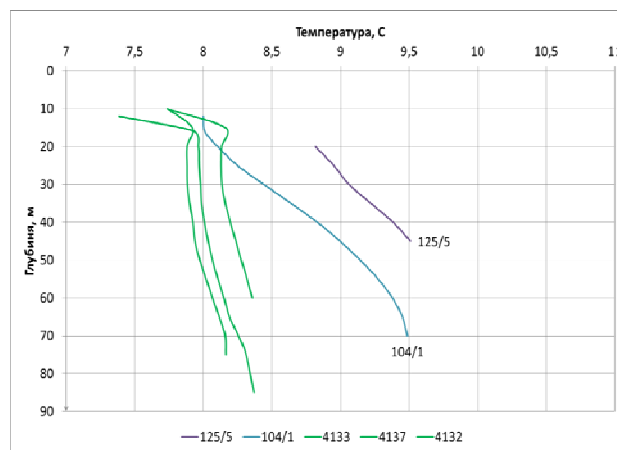


Рисунок 5. Сравнительная диаграмма результатов термокаротажных работ на площадке "Сары-Узень" и "Новая"

Не подписанные на диаграмме кривые отображают температуры фоновых скважин, которые замерялись на площадке «Новая». Таким образом, установлены повышенные температуры подземных вод в местах проведения ЯИ.

Дальнейшие работы, включая бурение специальных скважин, позволят получить более полные данные о возможных подземных источниках тепла.

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ:**

- Исследования на площадке «Сары-Узень» показали наличие признаков процессов подземной газификации углистых пород. К критическим скважинам следует отнести скважины: 102, 104, 109, 110, 129, 133, 215, 2613; 2803, X-1, X-2; X-4, на этих скважинах следует провести более детальные работы для получения данных о процессах подземной газификации на этой испытательной площадке. Вполне вероятно что на объектах X-1, X-2 и X-4 были проведены химические взрывы большой мощности. Дополнительные исследования позволят выяснить более полные данные.

- Дальнейший мониторинг концентрации газов в почвенном воздухе эффективен с точки зрения изучения динамики метана и водорода в почвенном воздухе.

- В результате выгорания горной породы в процессе газификации возможно образование проседаний и провалов дневной поверхности. Для слежения за такими изменениями целесообразно проводить геоморфологический мониторинг с использованием долговременных реперов, которые следует разместить в местах расположения газовых аномалий на приустевых площадках скважин, а также на площадках тех скважин, где отмечаются высокие концентрации газов в почвенном воздухе на небольших участках.

- Установлено, что потенциально опасные участки могут располагаться на расстоянии более 350 метров от устья «боевых» скважин. Необходимо установить границы газовых аномалий для чего следует провести повторную газовую съемку с большим масштабом.

- Установлены повышенные температуры в подземных водах в местах расположения «боевых» скважин. Дальнейшие исследования позволят выявить больше подробностей о тепловых параметрах эпицентров взрывов.

### **ПРЕЖДЕВРЕМЕННОЕ СТАРЕНИЕ ПРИ РАДИАЦИОННЫХ ПОРАЖЕНИЯХ ЧЕЛОВЕКА И ФЕНОМЕН ГЕТЕРОХРОМАТИЗАЦИИ КЛЕТОК ОРГАНИЗМА**

Н.Н.Ильинских, А.Ю.Юркин, Е.Н.Ильинских, И.Н.Ильинских  
*Сибирский государственный медицинский университет (г.Томск, Россия)*

*У лиц проживающих в юго-западных районах Алтайского края, примыкающих к зоне Семипалатинского атомного полигона наблюдается преждевременная гетерохроматизация некоторых районов хромосом, характерная для лиц старческого возраста, при этом у них повышено количество клеток с нарушениями в структуре хромосом и нарушена система эксцизионной ДНК-репарации. Эксперименты в условиях *in vitro* свидетельствуют о повышенной чувствительности цитогенетического аппарата Т-лимфоцитов крови аборигенов этих районов к облучению.*

Наши данные, а также результаты исследований других ученых показали, что у жителей юго-западных районов Алтайского края существенно повышен уровень соматических клеток с цитогенетическими нарушениями и значительно снижена активность ДНК-репаративных систем. Известно, что аналогичное явление отмечается в процессе старения человека (В.В.Фролькис, 1977, Т.А.Лежава 1977, 1979, 1980; Р.Соок, 1972). Имеются неоспоримые свидетельства того, что при радиационных поражениях у человека наблюдается преждевременное старение и появление болезней, характерных для лиц старшей возрастной группы, т.е. облучение как бы приближает те болезни которые должны, в силу имеющегося генотипа, развиваться у человека в старческом возрасте. Следует отметить, что практически отсутствуют методики позволяющие достаточно точно установить степень постарения организма у человека. В то же время большинство ученых - геронтологов сходятся во мнении, что с возрастом у человека наблюдается высокая степень гетерохроматизации клеток, т.е. происходит инактивация генетического материала. По мнению Ю.Б.Вахтина (2001) такое явление обусловлено накоплением в организме генетически дефектных клеток и если организм не способен их ликвидировать, то включается другой путь - инактивация (гетерохроматизация) генетически дефектных клеток, как правило, эти клетки дифференцируются, поскольку для выполнения специфической функции дифференцированной клетке требуется нормальное функционирование не более 1-5% генома. В то же время гетерохроматизация это "тупиковый путь" поскольку имеются факты, что гетерохроматизированные районы хромосом подвергаются большим повреждениям и репарируют нарушения в ДНК гораздо хуже чем активные - эухроматиновые районы хромосом W.W.Nichols, 1966, E.Harbers, W.Sandritter, 1968, T.Natarajan, G.Ahnstrom, 1979) кроме того гетерохроматизация клеток наблюдается при начальных этапах канцерогенеза. При гетерохроматизации наступает утеря способности клеток к элементарным обменным процессам, которые могут привести клетку к гибели или же этот процесс приводит к утрате контрольных механизмов за ростом и размножением клеток, что способствует развитию опухоли ( E.Harbers, W.Sandritter, 1968 ).

Исходя из изложенного, а также имеющихся данных о генетической ситуации в юго-западных районах Алтайского края, находящихся в непосредственной близости от Семипалатинского полигона, в настоящей работе ставилась цель – изучить степень гетерохроматизации соматических клеток у жителей этого региона, сравнив с



полученными аналогичными данными, наблюдаемыми у лиц, проживающих в экологически благополучных регионах России.

### Материал и методы

Исследование проведено на культурах Т-лимфоцитов, полученных по методу P.Moorhead et al. Кровь для анализа забирали у здоровых людей, проживающих в пос. Саратовка Рубцовского района, пос. Лаптев Лог Угловского района и пос. Бурла Бурлинского района Алтайского края. Всего обследовано людей в возрасте до 30 лет - 60 человек; 31-40 - 62 человека; 41- 50 – 52 человека и в возрасте 71 и старше -66 человек, в каждом поселке в данной возрастной группе обследовано не менее 20 человек. У человека изучено не менее 50 интерфаз Т-лимфоцитов электрономикроскопически, 100 - 150 метафаз на предмет наличия хромосомных aberrаций, а также размеров блоков гетерохроматина в 1, 9 и 16 хромосомах с локализацией разрывов хромосом по длине дифференцированно окрашенных хромосом кариотипа, кроме того проведено изучение активности ДНК-репаративных систем в ядродержащих клетках крови человека. Наряду с этим осуществлено изучение степени гетерохроматизации Т-лимфоцитов пуповинной крови у 28 новорожденных Угловского и Бурлинского районов Алтайского края. У каждого обследуемого индивидуума проведено фотографирование метафазных хромосомных пластинок и с помощью программы Image-6-g оценены размеры С-сегментов хромосом 1, 9 и 16. Результаты замеров оценивали в мкм, учитывая общее увеличение от исходного размера хромосом в 3000 раз. Гомологичные хромосомы исследовались раздельно. Подсчет процента конденсированного хроматина проведен в Институте цитологии АН РФ на фотографиях лимфобластов с помощью морфометрической сетки случайного шага по методу В. Робертсона (2006). Анализ уровня хромосомных aberrаций был стандартен (А.А.Прокофьева-Бельговская,1969). Активность эксцизионной ДНК-репарации проводили методом изложенным N. Anderson et al (2005) В работе применен метод Стьюдента и корреляционный анализ изложенный в работе Гублера и Генкина (1972). Анализ размеров С-блоков гетерохроматина 1, 9 и 16 хромосом проводили согласно рекомендациям изложенным в руководстве "Предложения по стандартизации методов учета полиморфизма хромосом человека" подготовленным совместно Тартуским Университетом и Институтом медицинской генетики РАМН (г. Москва). Степень спирализации хромосом в обследуемых группах была близка (реперная хромосома 2 имела размеры 7,45±0,04 и 7,48±0,06 мкм) Экстремальными вариантами считались С-сегменты, величина которых выходила за пределы двух стандартных отклонений. В зависимости от разницы в величине гомологичных хромосом выделяли три степени гетероморфизма гомологов - 20, 25 и 30% (С.Ю.Киви и др., 1981).

### Результаты и их обсуждение

Как свидетельствуют полученные нами данные имеются достоверные отличия в уровне конденсированного хроматина в Т-лимфоцитах крови у доноров - аборигенов Бурлинского, Угловского и Рубцовского района, рожденных в 1949 - 1962 г.г. , меньшие, однако также достоверные различия зарегистрированы для аборигенов, рожденных 1969 - 1982г.г. Наибольший уровень конденсированного хроматина отмечен в том и другом случаях в Т-лимфоцитах доноров, проживающих в Угловском районе Алтайского края.

Конденсация хроматина в клетках аборигенов, проживающих в Бурлинском районе растет экспоненциально в зависимости от возраста донора. В то же время у аборигенов Угловского и Рубцовского районов наблюдается существенное ускорение процессов гетерохроматизации и , например, у 30-летнего жителя Рубцовского района степень конденсации хроматина в Т-лимфоцитах крови такая же как и у 50-летнего жителя благополучного в экологическом отношении Бурлинского района. Еще более существенная гетерохроматизация отмечена в Т-лимфоцитах крови у жителей Угловского района.

Анализ уровня клеток с хромосомными aberrациями, а также активности эксцизионной ДНК-репарации у лиц с высоким уровнем гетерохроматизации клеток свидетельствует, что чем больше степень конденсации хроматина, тем больше частота aberrаций хромосом и ниже способность ДНК к репарации.

Измерение С-сегментов гетерохроматина в 1 хромосоме показывает что у доноров Бурлинского района с возрастом наблюдается постепенное увеличение блоков гетерохроматина. Наиболее значительные блоки С-гетерохроматина отмечены у лиц в возрасте более 71 года. У доноров Угловского района в возрасте 31-40 лет , а у доноров Рубцовского района в возрасте 41-50 лет размеры блока С-гетерохроматина были такие же как у доноров Бурлинского района в возрасте 51 - 60 лет.

Т а б л и ц а 1

Размеры с-сегментов гетерохроматина 1 хромосомы у лиц, различного возраста, аборигенов бурлинского, угловского и рубцовского районов алтайского края ( в мкм )

Районы	Возраст доноров					
	21-30	31-40	41-50	51-60	61-70	71 и более
Бурлинский (контроль)	1,27± 0,028	1,26± 0,032	1,32± 0,029	1,49± 0,034	1,34± 0,026	1,30± 0,034
Угловский	1,22± 0,034	1,49± 0,026**	1,56± 0,032*	1,68± 0,031*	1,81 ± 0,029*	
Рубцовский	1,26± 0,028	1,28± 0,031	1,42± 0,031	1,61 ± 0,034**	1,72± 0,029*	

*Примечание: Звездочками отмечены достоверные отличия от контроля- одной при  $P>0,01$  , двумя при  $P>0,05$  .*

Анализ размеров С-сегментов в 9 и 16 хромосомах показывает, что в контрольной популяции Бурлинского района не наблюдается существенных отличий этого показателя в зависимости от возраста донора. В то же время в Угловском районе у лиц в возрасте старше 51 года отмечено достоверное увеличение С-боков гетерохроматина в хромосоме 9.

Установлено, что у жителей Угловского района родившихся с 1949 по 1962 годы особенно значителен был уровень цитогенетических нарушений в тех случаях когда в их кариотипе присутствовала 1 хромосома с крупными и очень крупными блоками гетерохроматина.

Имеется четко выраженная прямопропорциональная зависимость между уровнем клеток с хромосомными аберрациями с одной стороны и степенью конденсации хроматина в Т-лимфоцитах, зарегистрированной электрономикроскопически, и это явление наблюдается у доноров как Угловского, Рубцовского, так и Бурлинского районов Алтайского края. Такая же зависимость отмечена для С-блока гетерохроматина в хромосомах 1 и 9, но только для доноров из Угловского и Рубцовского районов. Обратнопорциональная зависимость отмечена в случаях сравнения индекса ДНК репарации и степени конденсации хроматина, а также увеличения блока С-гетерохроматина в хромосомах 1 и 9 при обследовании жителей юго-западных районов Алтайского края.

Т а б л и ц а 2

Коэффициенты корреляции, наблюдаемые при сравнении степени гетерохроматизации лимфоидных клеток и показателей стабильности генома клеток крови у жителей алтайского края

Регистрируемый показатель	Район проживания донора	Степень конденсации хроматина	Размеры блоков С-гетерохроматина в хромосомах		
			1	9	16
Уровень клеток с цитогенетическими нарушениями	Бурлинский	* +0,64	+0,32	+0,17	+0,08
	Угловский	* +0,86	* +0,64	* +0,92	+0,16
	Рубцовский	* +0,72	* +0,52	* +0,83	+0,14
Индекс эксцизионной ДНК-репарации	Бурлинский	-0,12	-0,08	-0,18	-0,16
	Угловский	* -0,62	* -0,67	* -0,72	* -0,56
	Рубцовский	* -0,78	* -0,64	* -0,50	* -0,48

*Достоверные значения коэффициента корреляции отмечены звездочками при  $P>0,01$ .*

Изучение степени конденсации хроматина в Т-лимфоцитах у новорожденных позволяет сделать вывод о том, что имеется достоверное повышение уровня конденсированного хроматина в клетках детей из Угловского района. Облучение культур Т-лимфоцитов в дозе 0,5 Гр вызывает различный цитогенетический эффект в зависимости от того – какая степень гетерохроматизации клеток. Особенно существен был уровень хромосомных аберраций у тех доноров, которые имели повышенную конденсацию хроматина. Мы полагаем, что это явление обусловлено меньшей чувствительностью эухроматиновых районов хромосом по сравнению с гетерохроматиновыми зонами, а также высокой активностью ДНК-репаративных процессов в активных районах ядерного аппарата, т.е. при его деконденсации (W.Nichols, 1966; A.T.Natarajan, G.Ahnstrom, 1973 ).

Гипотетическая схема, излагающая возможный путь изменений в генетическом аппарате жителей юго-западных районов Алтайского края, подвергшихся воздействию в течение длительного времени инкорпорированному облучению радионуклидами основана на известном факте свидетельствующем о том, что старение организма сопровождается гетерохроматизацией клеток организма и накоплением генетических дефектов. Как мы полагаем в юго-западных районах Алтайского края у аборигенов под влиянием радиационного воздействия происходил процесс гетерохроматизации, сопровождающийся преждевременным старением организма. Новое поколение унаследовало измененный генотип в виде мелких дефектов хроматина, что в свою очередь, по-видимому, также приводит к преждевременной гетерохроматизации клеток организма и преждевременному старению.

#### **Выводы**

1. У аборигенов юго-западных районов (Угловский и Рубцовский) Алтайского края наблюдается явление преждевременной конденсации (гетерохроматизация) Т-лимфоцитов крови, в норме (аборигены Бурлинского района) это характерно только для лиц старческого и преклонного возраста.
2. Калибровочная кривая, построенная на основании данных относительной конденсации хроматина в Т-лимфоцитах, наблюдаемой с возрастом у доноров Бурлинского района, позволяет при экстраполяции результатов аналогичного

обследования аборигенов юго-западных районов Алтайского края, говорить о степени преждевременного старения местного населения, вызванного, как мы полагаем, воздействием на организм инкорпорированного облучения.

3. Повышенная гетерохроматизация Т-лимфоцитов отмечается в Угловском районе не только у взрослых, но и у новорожденных детей, рожденных в семьях аборигенов этого района

4. Степень гетерохроматизации зарегистрированная электронномикроскопически и при анализе С-блоков хромосом 1, 9 и 16 прямопропорционально коррелирует с уровнем хромосомных aberrаций и обратнопропорционально с показателями активности ДНК-репарации Т-лимфоцитов крови у аборигенов Угловского и Рубцовского районов Алтайского края.

5. Эксперименты в условиях *in vitro* показали, что гамма-облучение в дозе 0,5 Гр культур Т-лимфоцитов, имеющих высокую степень конденсации хроматина индуцирует существенно больший уровень хромосомных aberrаций, чем облучение культур Т-лимфоцитов, имеющих низкие показатели гетерохроматизации клеток.

## РАДИОЭКОЛОГИЯ В РАЗВИТИИ ТОПЛИВНО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО КОМПЛЕКСА РОССИИ

<sup>1</sup>Глухов Г.Г., <sup>1</sup>Чикова И.В., <sup>2</sup>Ляхова В.А., <sup>2</sup>Чуданова А.Л.  
<sup>1</sup>Физико-технический институт ФГБОУ ВПО НИ ТПУ, г. Томск  
<sup>2</sup>ОАО «Томскнефть» ВНК, г. Стрежевой

Главными задачами для изучения радиоэкологической обстановки топливно-энергетического комплекса являются:

- исследование радиационно-экологической обстановки на территориях, предназначенных для размещения предприятий НГК. В этом случае результаты исследования являются базовыми для оценки фонового состояния природной среды. В изучаемом нами регионе Западная Сибирь, природный уровень радиационного фона лежит в пределах 0,06-1 мкЗв/час. Уровень фона на предприятиях НГК определяется радиоактивностью используемых для отсыпки территории и материалов и лежит в пределах 0,08-0,12 мкЗв/час;

- изучение условий труда персонала обслуживающего технологический комплекс нефтегазодобычи с целью установления наличия радиационного фактора на рабочих местах и обеспечения радиационной безопасности.

Впервые радиоактивное загрязнение местности на нефтепромыслах обнаружили американские ученые. Они установили, что содержащиеся в земной коре и в течении десятилетий доставляемые на поверхность в результате добычи нефти соли радия и тория загрязнили обширные территории в районе нефтяных месторождений. В 80<sup>х</sup> годах на месторождениях нефти в Татарстане стали известны факты интенсивных отложений радиоактивных осадков на технологическом оборудовании товарных парков и установок подготовки нефти [1]. Техногенные радиоактивные загрязнения связанные с нефтедобычей, проявляются и в других регионах России [2].

Значительные территории оказываются зонами радиоактивного загрязнения в результате сброса дебалансовых вод на поля испарения и фильтрации. При этом на площадях в десятки и сотни гектаров мощность дозы гамма-излучения составляет от 1 до 10 мкЗв/час, достигая 0,03 мЗв/час в местах очистки технологического оборудования. Радиоактивное загрязнение образуется также при многочисленных прорывах нефтепроводов (до тысяч в год). Прогнозируется, что при сохранении существующего положения районы нефтедобычи могут стать зонами экологического бедствия [2].

Серьезная обеспокоенность в связи с радиоактивным загрязнением окружающей среды при нефте- и газодобыче выражается и в других странах [3].

Природа радиоактивности осадков связана с наличием в них радионуклидов Ra-226, Th-232 и продуктов их распада. Удельная активность осадков достигает иногда  $4 \cdot 10^8$  Бк/кг. Содержание же материнских радионуклидов U-238 и Th-232 в радиоактивных отложениях солей не превышает фоновых значений. Рабочая гипотеза для объяснения процесса, при котором происходит увеличение содержания изотопов радия в пластовых и закачиваемых водах при нефтедобыче, представлена в работе [4]. Обогащение вод изотопами радия рассматривается как результат перераспределения радиоактивного агента между различными фазами нефтяного пласта при вытеснении нефти водой. Материнских элементов U-238 и Th-232, из которых образуются Ra-226 и Ra-228, в пластовых водах нефтяных месторождений практически нет.

Материнские элементы содержатся непосредственно в нефти и вмещающих породах. В результате радиоактивного распада урана и тория, содержащихся в нефти и процессов выщелачивания из минерального скелета вмещающих пород в нефтях постоянно образуются изотопы радия. В статистическом состоянии, в котором находится нефть в природных ловушках, обмена радием между нефтью и подпирающими водами практически нет, за исключением зоны водонефтяного контакта. Поэтому радий присутствует в нефти в избытке по сравнению с тем состоянием, при котором вся масса нефти контактировала бы с водой.

Большую опасность для персонала могут представлять долгоживущие радиоактивные элементы, получаемые в результате распада радона (свинец-210, висмут-210 и полоний-210). Их концентрация может продолжать увеличиваться в трубопроводах, перерабатывающих установках, цистернах, баках в течение длительного времени (более 100 лет). При попадании этих продуктов распада даже в очень ограниченном количестве вместе с пылью и аэрозолями в легкие человека сильно повышается риск заболевания раком легких.

В процессе разработки пластовые и закачиваемые воды интенсивно поступают в нефтяные пласты. Поверхность раздела фаз (нефть и вода) резко увеличивается, начинается обмен частицами между фазами и радий уходит в поток фильтрующих вод. В результате вытеснения нефти водой наступает равновесие распределения радия между водой и нефтью. Содержание радия в пластовой воде  $C_{Ra,B}$  при этом равно:

$$C_{Ra,B} = C_{Ra,H} / K_p,$$

где  $C_{Ra,H}$  - содержание радия в безводной нефти (примерно  $2,8 \cdot 10^2$  Бк/м<sup>3</sup>);

$K_p$  - равновесный коэффициент распределения радия между нефтью и водой ( $K_p = 2,9 \cdot 10^4$ ).

Из приведенного соотношения следует, что содержания радия в воде становится равным  $\sim 10^6$  Бк/м<sup>3</sup> [4].

В водах нефтяных месторождений радий всегда присутствует совместно со своим близким химическим аналогом - барием и они обычно находятся в растворенном состоянии. Но если в воде повышается содержание сульфат - ионов, то происходит соосаждение радия и бария в виде радиобарита  $Ba(Ra)SO_4$ . Повышение концентрации сульфат - ионов наблюдается при заводнении пластов как закачиваемыми, так и пластовыми водами. Когда воды с повышенным содержанием радия начинают поступать в скважины через интервалы перфорации или обтекать в процессе фильтрации стенки неперфорированной скважины, происходит выпадение радиобарита на поверхности цементного кольца скважины. При подъеме жидкости по стволу скважины происходит выпадение радиоактивных солей в электроцентробежных насосах, насосно-компрессорных трубах и поверхностных резервуарах.

В настоящее время проблема отложения радиоактивных солей на технологическом оборудовании при добыче, сборе, транспортировании и подготовке нефти имеет глобальный характер.

По данным д-ра П. Грея (OGCI, США), до 30% добывающих скважин в США загрязнены радиоактивными солями. Ежегодно в нефтедобывающей промышленности США образуется порядка 450 тыс. т радиоактивных отходов и за последние 20 лет их скопилось более 8 млн. т.

Интенсивное отложение радиоактивных солей на технологическом оборудовании отмечено на месторождениях Северного моря и ряде других нефтяных и газовых месторождений.

В пределах бывшего Советского Союза отложения радиоактивных солей на оборудовании скважин было обнаружено в начале 50<sup>х</sup> годов на Северном Кавказе, Апшероне и в других нефтедобывающих регионах, в середине 60<sup>х</sup> годов - на ряде месторождениях Татарии. По состоянию на 01.01.71 из 2100 обследованных скважин порядка 25% загрязнено радиоактивными солями. С увеличением обводненности продукции, опреснением добываемых вод интенсивность солеотложений значительно уменьшилась и с конца 70<sup>х</sup> годов отмечаются лишь единичные случаи.

Осадки, скопившиеся на оборудовании скважин (НКТ, ЭНЦ), ТП и УКПН, различаются по своим физико-химическим характеристикам. Первые на 90-95 % состоят из радиобарита -  $Ba(Ra)SO_4$  с незначительными примесями других соединений. В условиях месторождений Татарии на оборудовании скважин (НКТ, ЭНЦ) они отлагаются в виде прочной пленки толщиной до 3 мм. В других регионах толщина осадка может быть значительной. Иногда полностью перекрывается проходное сечение труб (рис.1).

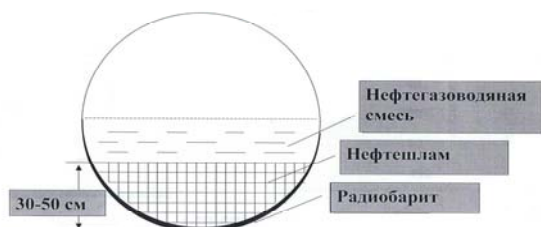


Рисунок – 1 Распределение осадка в аппаратах горизонтального типа УПН

Осадки на технологическом оборудовании ТП и УКПН имеют гораздо более сложные физико-химические характеристики. До 50% общей массы составляют углеводороды (тяжелые фракции нефти, асфальтосмолистые вещества, парафины). Содержание радиобарита в минеральной составляющей осадка для месторождений Татарии изменяется от 0,3 до 1,7% весовых при среднем значении порядка 1 %. Основная часть минеральной составляющей представлена окислами железа, кремния, алюминия, карбонатом кальция и другими соединениями. По нашим данным, содержание радиобарита в осадках для условий других регионов может достигать 80-90 %.

Загрязнение технологического оборудования радиоактивными осадками требует: обеспечения радиационной безопасности персонала при обслуживании и ремонте оборудования, загрязненного радиоактивными осадками; предотвращения радиационного загрязнения окружающей среды; создание технологий утилизации и захоронения радиоактивных отходов, образующихся при ремонте оборудования;

регулирование (законодательное) работ с подобными отходами в нефтеперерабатывающей промышленности.

Рассматривая вопросы обеспечения радиационной безопасности персонала, следует выделить два вида работ. Первый - обслуживание оборудования, не связанное с его ремонтом, вскрытием, очисткой. Проведенные хронометраж и расчеты показывают, что при этих работах персонал находится незначительное время около загрязненного оборудования и доза облучения не превышает допустимых уровней. Годовая доза при нормальном ходе

технологического процесса не превысит 0,003 мЗв. Это вполне допустимый уровень облучения с точки зрения действующего санитарного законодательства. В то же время женщины должны освобождаться от обслуживания подобного оборудования на весь период беременности.

Более сложная радиационная ситуация складывается при ремонте технологического оборудования, особенно при очистке различных технологических емкостей большого объема. Здесь существует реальная угроза как внешнего, так и внутреннего облучения сверхустановленных уровней, если не принимаются специальные меры по защите персонала.

В силу слабой механизации ремонтно-очистных работ большинство операций при их проведении выполняется вручную. При этом ремонтный персонал непосредственно контактирует с радиоактивными осадками. Особенно это характерно для процессов, связанных с очисткой технологических резервуаров большой вместимости. Данный вид работ особенно неблагоприятен с точки зрения облучения наиболее критических органов - гонад, костного мозга.

В [8] даны рекомендации по обращению с радиоактивными отходами на нефтедобывающих предприятиях. Но они не решают в целом проблемы радиационной безопасности при ремонтных работах. Наиболее полно этот вопрос может быть решен только при максимально возможной механизации очистных работ. Это в свою очередь требует проведения специальных НИР и ОКР.

Рассмотрим радиационно-экологическую обстановку на территории и объектах производственной деятельности ОАО «Томскнефть» ВНК.

Оценка результатов, полученных при исследовании территории и объектов производственной деятельности ОАО «Томскнефть» ВНК и сравнение их с нормативным значением 0,5 мкЗв/час.

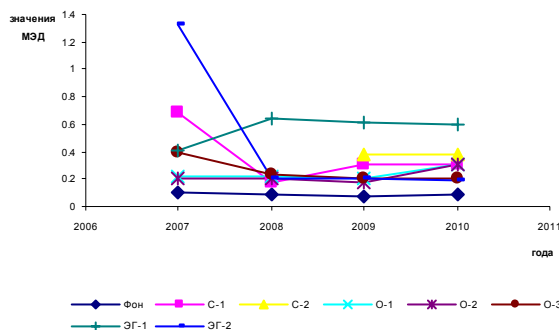


Рисунок-2 Катильгинское месторождение ЦППН «Пионерный», первая очередь аппаратов

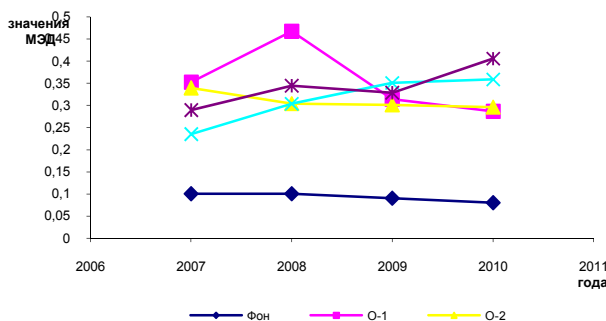


Рисунок-3 Катильгинское месторождение ЦППН «Пионерный», вторая очередь аппаратов

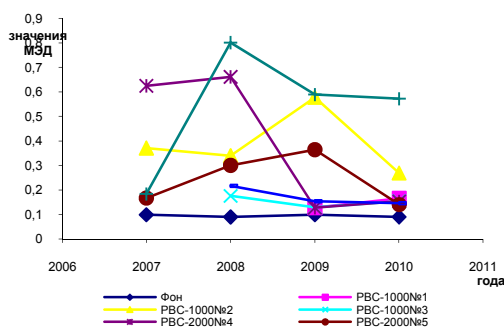


Рисунок-4 Катильгинское месторождение ЦППН «Пионерный», резервуарный парк

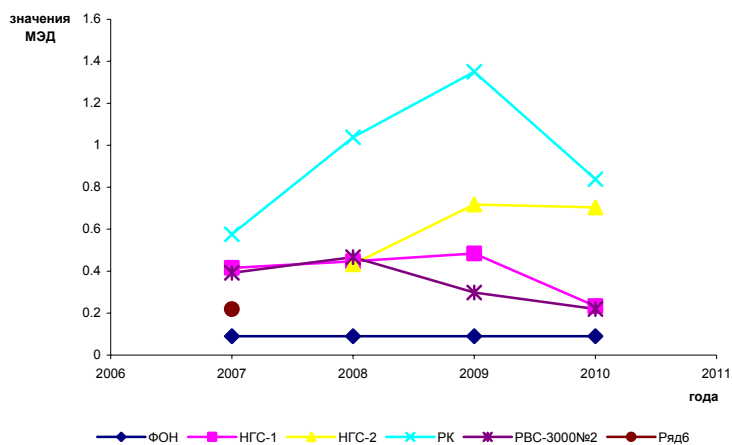


Рисунок-5 Вахское месторождение УПСВ-5

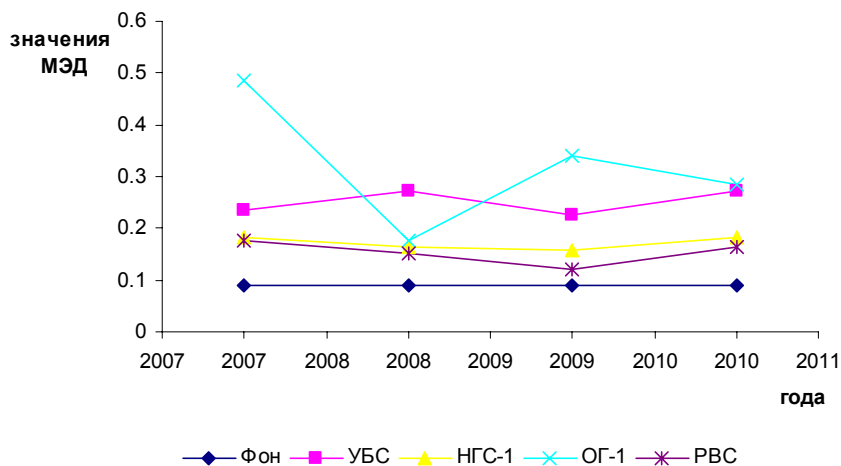


Рисунок-6 Ломовое месторождение УПСВ-7

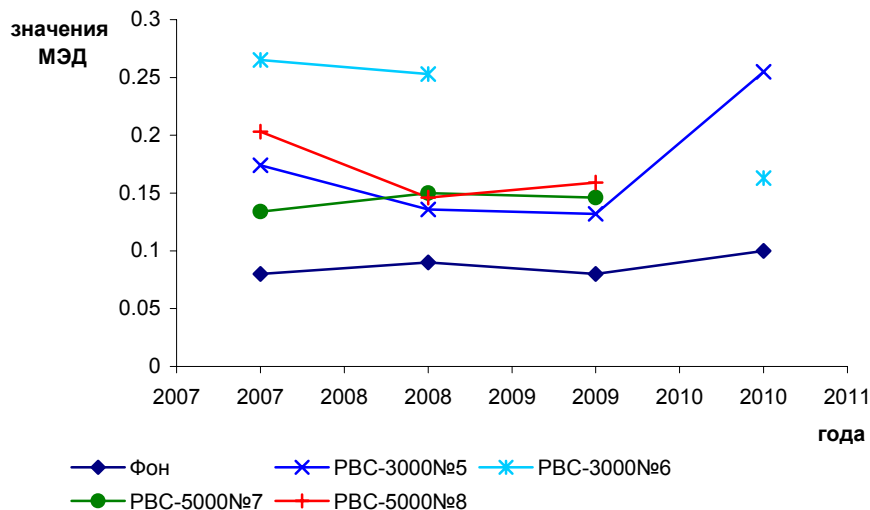


Рисунок-7 Лугинецкое месторождение

Работы с ОАО «Томскнефть» ВНК будут продолжены в последующие годы. Мы надеемся получить новую информацию о состоянии и динамики накопления радиоактивных осадков в аппаратах первичной подготовке нефти и газа, и на промышленном оборудовании нефти и газа.

#### Литература

- Ш.Ф. Тахаутдинов, Б.А. Сизов, Р.Н. Дияшев, В.И. Зайцев, проблема радиоактивных осадков на технологическом оборудовании. Безопасность труда в промышленности. №2, 1995, с.36-39.
- Ю.А. Никифоров, радиоактивное загрязнение окружающей среды при нефтедобыче на примере Ставропольских месторождений. Российский геофизический журнал. №3- 4, 1994, с.81-84.

10. А.А. Попов. Предотвращение радиоактивного загрязнения при разведке и разработке нефтяных и газовых месторождений. Защита от коррозии и охрана окружающей среды. №3-4,1996, с. 23-27.
11. М.Х. Хуснуллин. Геофизические методы контроля разработки нефтяных пластов. М., Недра, 1989, 190с.
12. Л.Д. Бродер, А.А. Соловьянов, А.В. Зимин. Проблемы радиационной безопасности на предприятиях топливно-энергетического комплекса России. Безопасность труда в промышленности. № 5, 1993, с. 59 - 62.
13. Н.А. Белюсенко, А.А. Соловьянов, В.А. Гончаров и др. Принципы системного обеспечения радиационно-экологической безопасности и контроля в топливно- энергетическом комплексе России. Безопасность труда в промышленности. № 7, 1994, с. 47-51.
14. Н.А. Белюсенко, А.А. Соловьянов. Принципы программного обеспечения радиационно-экологической безопасности на объектах ТЭК России. Безопасность труда в промышленности. № 1, 1996, с. 30-34.
15. В.Г. Савенков, Е.А. Смирнова, В.А. Трифионов. Современные аспекты изучения радия в осадках нефтяных вод. Радиохимия. № 1, 1997, с. 89-92.
16. С.А. Захарчук, И.А. Крамный, В.И. Мильчаков. Радиоактивное загрязнение окружающей среды при нефтедобыче. АНРИ № 4, 1998, с. 16-20.
17. Д.О. Горбачев. Обоснование требований по обеспечению радиационной безопасности на предприятиях нефтегазового комплекса. Вестник СамГУ – Естественнонаучная серия №9 (49), 2006, с.128-136.
11. СанПиН 2.6.1.2523-09. Санитарные правила и нормативы. НРБ-99/2009. Нормы радиационной безопасности. -М., 2009.
12. СП-2.6.1.2612-10. Основные санитарные правила обеспечения радиационной безопасности (ОСПОРБ-99/2010): Санитарные правила и нормативы. – М.: Федеральный центр гигиены и эпидемиологии Роспотребнадзора, 2010.- 83с.
13. Федеральный закон Российской Федерации от 11 июля 2011г. № 190-ФЗ «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации».

## РАЗВИТИЕ ЭКСПЕРТНЫХ РАБОТ В ИЯФ НЯЦ РК

А.Ж. Тулеушев, П.В. Чакров, В.П. Солодухин, В.Н. Глущенко, В.Л. Позняк,  
А.Н. Быченко, Д.А. Желтов, Е.М. Якушев, А.М. Назаренко  
*Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан*

### Введение

В последнее время во всем мире значительно усилилась террористическая активность, которая проявляется в самых разнообразных формах. Все чаще появляются сообщения об угрозах террористических актов с применением ядерных и радиоактивных материалов. «Черный рынок» пытается активизировать свою деятельность по продаже ядерных и радиоактивных материалов и изделий. Нелегальный ядерный бизнес по прибыльности стоит сразу после незаконной международной торговли оружием и наркотиками. По данным МАГАТЭ в Европе за 1992-1998 гг. было зарегистрировано 173 случая хищения ядерных и радиоактивных материалов. По состоянию на июнь 1999 г. МАГАТЭ получило 320 сообщений из 60-ти государств о незаконном обороте радиоактивных материалов. Основная их часть (129 случаев) связана с природным ураном, низкообогащенным ураном, обедненным ураном и торием. Значительная доля (119 случаев) относится также и к радиоактивным источникам, включая цезий-137, кобальт-60, америций-241 и стронций-90 [1-5].

В Казахстане имеется целый ряд факторов, дающих основу для такого рода «бизнеса»: ведется интенсивная добыча и переработка уранового сырья; на атомных реакторах применяются ядерные и радиоактивные материалы; на промышленных предприятиях и в медицинских учреждениях используются всевозможные радиоактивные источники и радиофармпрепараты. В связи с этим в стране, как и во всем мире, уделяется большое внимание проблемам незаконного оборота ядерных и радиоактивных материалов [6-9]. Важным звеном в решении этих проблем является организация технической экспертизы такого рода материалов.

### Краткий обзор экспертных работ

В ИЯФ НЯЦ РК имеется многолетний опыт выполнения работ по технической экспертизе различных объектов и материалов [10-12], развита и постоянно совершенствуется аппаратно-методическая база. За период с 2000 г по 2011 г. проведено 56 экспертиз. Из них 24 экспертизы (43 %) выполнены по исследованию нерадиоактивных объектов и материалов: объектов золоторудной промышленности, медицинских препаратов, образцов сталей и цветных металлов, образцов стабильного цезия ( $^{133}\text{Cs}$ ), псевдо-«красной ртути», псевдо-«осмия-187» и псевдо-«селена-74». Более половины экспертных работ (57 %) связано с определением состава и уровня активности всевозможных ядерных и радиоактивных объектов и материалов. На Рис.1 приведены фотографии некоторых радиоактивных объектов и материалов, изъятых из незаконного оборота. На Рис. 2 представлено относительное распределение количества выполненных экспертиз радиоактивных и нерадиоактивных объектов и материалов по годам в период с 2000 г. по 2011 г.

На рис.3 показано относительное распределение экспертиз ядерных и радиоактивных объектов и материалов, проведенных в этот же период, по составу радионуклидов.





Контейнеры с радиоактивными источниками



Учебный набор радиоактивных источников и пожарные извещатели, содержащие в себе радиоактивные источники плутония и америция



Урановые топливные таблетки



Образцы радиоактивного угля (слева) и урановой руды (справа)

Рис. 1. Радиоактивные объекты и материалы, изъятые из незаконного оборота

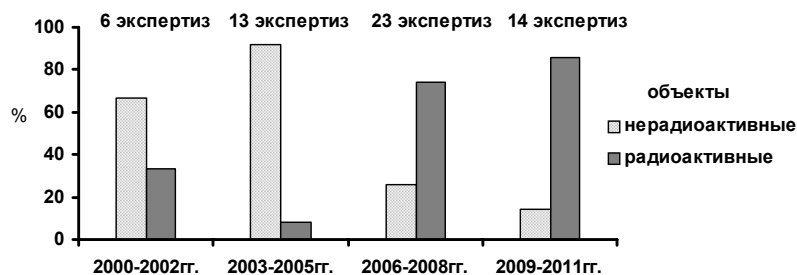


Рис. 2 Распределение количества экспертиз по годам и по объектам исследования

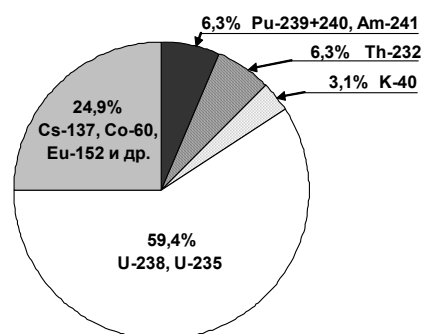


Рис. 3. Распределение количества экспертиз, ядерных и радиоактивных объектов по составу радионуклидов

Из Рис. 2 видно, что, начиная с 2006 г., существенно увеличился относительный вклад экспертиз радиоактивных объектов и материалов. В определенной степени этот график отражает профиль и динамику развития «черного рынка». Можно отметить также (Рис. 3), что наибольший интерес для этого «рынка» представляют объекты атомно-энергетического комплекса, содержащие уран: сырье, концентрат, отходы уранового производства, загрязненное металлическое оборудование, урановые топливные таблетки. Значительная доля проведенных экспертиз (31,2 %) приходится также и на радиоактивные источники ( $^{60}\text{Co}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и др.), различные по назначению и уровню активности. Среди остального ассортимента этого «рынка» можно отметить радиоактивный уголь с большим содержанием природного урана и различные материалы, содержащие плутоний.

#### Развитие методической базы экспертных работ

Из приведенного выше обзора очевиден особый интерес «черного рынка» к объектам и материалам, содержащим уран и плутоний. Несомненно, этот интерес связан с делящимися изотопами  $^{235}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}$ . В связи с этим, развитие аппаратурно-методической базы экспертных работ было подчинено цели усовершенствования и отработки процедур, режимов и схем определения концентрации и изотопного состава урана и плутония в различных объектах

методами гамма-спектрометрии (ГС), масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой (МС-ИСП) и термоионизационной масс-спектрометрии (ТМС). Ниже приводятся основные результаты выполненных работ.

Определение методом ГС содержания и изотопного состава урана в исследуемых объектах выполняется в соответствии с СанПиН РК № 5.06.001.98 (МИ 2143).

Ввиду того, что уран-238 является альфа-распадчиком, определение содержания этого изотопа проводится по его дочерним продуктам: торию-234 (по гамма-излучению 63,29 кэВ с выходом 4,8%) и протактинию-234m (по гамма-излучению 1001,03кэВ с выходом 0,837 %), находящимися в равновесии с ураном-238. Уран-235 может быть определен непосредственно по собственным линиям в гамма-спектре с энергиями 185,7кэВ с выходом 57,2 % и 205,3 кэВ с выходом 5%.

В связи с необходимостью измерений низкоэнергетического гамма- излучения для определения содержания изотопов урана в объектах и материалах большой плотности и различной конфигурации, а также создающейся при этом сложностью учета поглощения излучения в образцах (особенно в топливных элементах), проводится процедура подготовки спектрометрического образца в жидком виде путем частичного химического растворения анализируемого объекта (материала) и доведения выделенной аликвоты образца до стандартных плотностей.

Для перевода в жидкое состояние продуктов уранового производства ( окись-закись) от исследуемого объекта отбирается аликвота массой 100мг. Полученная проба растворяется в 10мл концентрированной азотной кислоты при комнатной температуре. После растворения объем пробы доводится до 50мл дистиллированной водой. Из полученного объема отбираются 5 параллельных образцов по 5мл и переносятся в измерительные полиэтиленовые тубусы с крышками. Объем образцов в тубусах доводится до 50мл. Подготовленные таким образом образцы поступают для измерения на гамма-спектрометре.

Перед переводом в раствор части топливного элемента объект взвешивается затем протравливается в 10мл концентрированной азотной кислоты при температуре 65 °С в течение 2минут. После травления объект промывается дважды дистиллированной водой по10мл. Растворы объединяются и их объем доводится до 50мл дистиллированной водой. Протравленный объект высушивается и снова взвешивается. По разнице масс объекта до и после процедуры травления вычисляется масса образца, перешедшего в раствор. При данной процедуре в раствор переходит 50-100мг. Из полученного объема отбираются 5 параллельных проб по 5мл и переносятся в измерительные полиэтиленовые тубусы с крышками. Объем пробы в тубусах доводится до 50мл. Подготовленные таким образом образцы передаются для измерений на гамма-спектрометре с полупроводниковым широкополосным детектором BE-3830 «Canberra», оборудованным тонким входным окном из углеродистого композита.

К измерениям приступают после стандартной процедуры градуировки по энергии и калибровки по эффективности гамма-спектрометра, используя стандартные образцы МАГАТЭ: IAEA - RGU-1, IAEA- 375 и IAEA-315 [13]. Время измерения каждого образца 1 час. Полученные спектры сохраняются в файле компьютера с указанием даты проведения измерений, кода пробы, геометрии измерения и массы аликвотной части исследуемого образца. Обработка спектрометрической информации и определение активности <sup>238</sup>U и <sup>235</sup>U в каждом измеренном образце осуществляются с использованием программного обеспечения «Genie 2000».

На рис. 4 представлена схема анализа и определения коэффициента обогащения урана топливных таблеток изотопом <sup>235</sup>U.

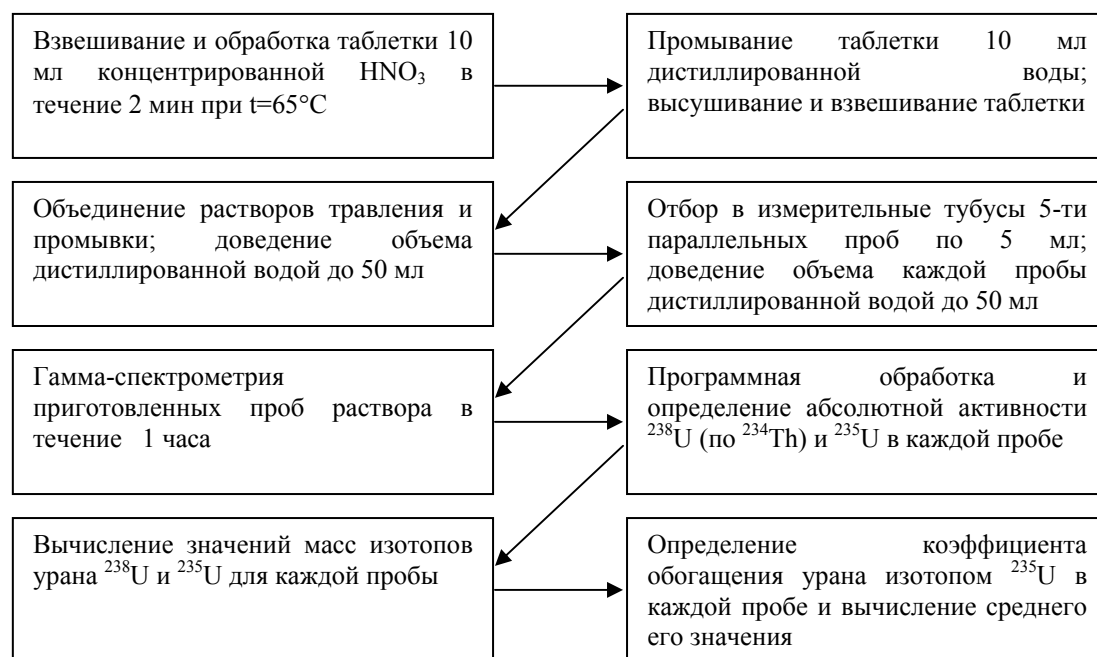


Рис. 4 Схема определения изотопного состава урана топливных таблеток методом гамма-спектрометрии

По результатам этих разработок составлена и утверждена методическая инструкция МИ-03-16-04-2011 «Процедура определения концентрации и изотопного состава урана методом гамма-спектрометрии».

Исходя из специфики состава и свойств наиболее распространенных в незаконном обороте ядерных и радиоактивных материалов, содержащих уран или плутоний, для их анализа **методом МС-ИСП** необходим перевод твердой фазы в раствор. Для этого, как правило, используют кислотное разложение в различных вариантах и сочетаниях.

Подготовка проб к анализу для определения в них валового содержания и изотопного состава плутония заключается в приготовлении образцов азотнокислых растворов. Для выделения и концентрирования  $^{239+240}\text{Pu}$  используется методика выполнения измерений № КЗ.07.00.01239-2010, основанная на экстракционной колоночной хроматографии (экстрагент – три-н-октиламин) с последующей очисткой от изотопов урана и тория [14]. Элюирование плутония с колонки осуществляют изопропиловым спиртом. Пропуская полученный раствор через микропористый фильтр (0,22 мкм), методом соосаждения со фторидом неодима выделяют плутоний. Фильтр с выделенным плутонием обрабатывают концентрированной азотной кислотой при нагревании до  $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Полученный раствор выпаривают до «влажных солей», затем добавляют 3М-ный раствор азотной кислоты. Вновь полученный раствор снова выпаривают до «влажных солей». Процедуру обработки фильтра повторяют дважды. Получившийся осадок кипятят 15 мин в 3М-ном растворе азотной кислоты, а полученный раствор охлаждают и центрифугируют. Полученный раствор является образцом, подготовленным для измерения изотопного отношения  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  на масс-спектрометре.

Суть методической схемы пробоподготовки для перевода урана в раствор заключается в автоклавном (микроволновом) разложении навески пробы в смеси кислот в определённых пропорциях при температуре выше  $100\text{ }^{\circ}\text{C}$  в течение длительного времени. Полученный таким образом выщелат центрифугируют и выпаривают при температуре около  $100\text{ }^{\circ}\text{C}$  до «влажных солей», остаток растворяют в 50 % – ном растворе азотной кислоты. Для масс-спектрометрического измерения берут аликвоту азотнокислого раствора, разбавленного дистиллированной водой в (10-10000) раз, в зависимости от содержания аналита.

К измерениям на масс-спектрометре ICP-MS ELAN 9000 «Perkin Elmer SCIEX» приступают после стандартной процедуры автоматической оптимизации основных параметров масс-спектрометра. Определение валового содержания урана и плутония осуществляют, используя программный метод Elan 9000 – Quantitative Analysis (количественный анализ), и начинают с градуировки по пяти точкам (включая ноль градуировки). Для этого готовят четыре раствора стандарта с такими содержаниями аналита, чтобы градуировочная характеристика перекрывала весь диапазон возможных содержаний аналита в образце.

В качестве стандарта для градуировки на исследования урансодержащих образцов используют стандартный образец № 9300233 фирмы Perkin-Elmer или аналогичный, сертифицированный стандарт.

Градуировочную характеристику для плутония получают с помощью сертифицированных стандартов или долгоживущих изотопов плутония (наиболее часто применяют  $^{242}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{239}\text{Pu}$ ), полученных на реакторе. Перед применением активность препарата плутония измеряют альфа-спектрометрическим методом, а затем пересчитывают в массовое содержание.

Измерение валовых содержаний урана и плутония проводят по стандартной процедуре методом «Quantitative analysis». Измерения изотопных отношений  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  и  $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  осуществляют, используя один из программных методов «Isotope Ratio» или «Isotope Dilution». Подробности по использованию всех этих методов изложены в «ELAN VERSION 3.0 Software Guide».

Вычисление изотопных отношений изотопов урана и плутония, а также валовых содержаний этих элементов в анализируемой пробе производится путем математической обработки результатов нескольких параллельных измерений по каждой пробе (не менее пяти автоматических сканирований масс-спектра). Вся информация по считыванию и обработке масс-спектра сохраняется в файле компьютера с указанием даты и порядкового номера измерения.

На рис. 5 представлена схема определения содержания урана и величины отношения его изотопов  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  в различных ядерных и радиоактивных объектах и материалах методом МС-ИСП.

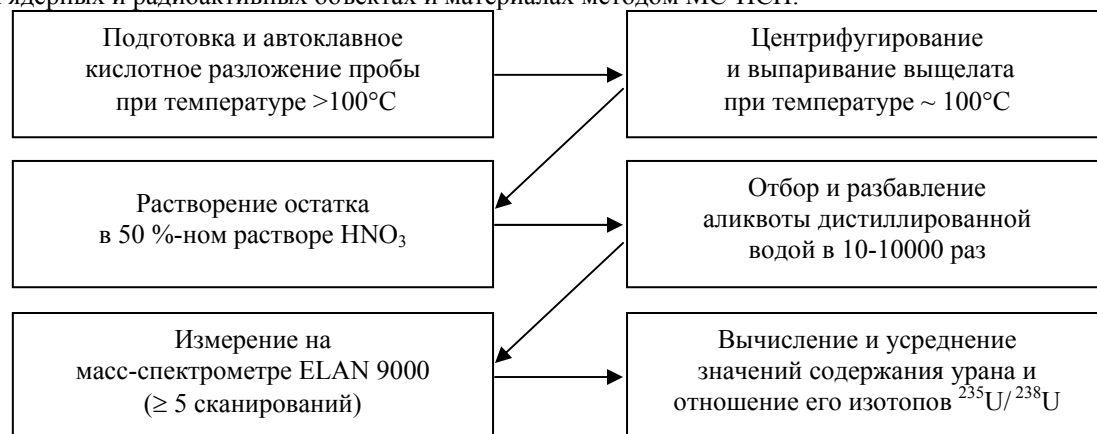


Рис. 5 Схема определения содержания урана и отношения изотопов  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  в различных объектах и материалах методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой.

По результатам этих разработок составлена и утверждена методическая инструкция МИ-03-16-03-2011 «Порядок определения содержания и изотопного состава урана и плутония методом масс-спектрометрии с индуктивно-связанной плазмой».

В ИЯФ НЯЦ РК создана уникальная призмная масс-спектрометрическая установка, которая **методом ТМС** позволяет определять с высокой чувствительностью изотопный состав урана и трансураниевых элементов [15].

Выполнены экспериментальные исследования и отработаны процедуры пробоподготовки для проведения экспертных работ этим методом с объектами и материалами (содержащими уран или плутоний), изъятыми из незаконного оборота.

Подготовка проб к анализу методом ТМС включает в себя следующее:

- Кислотная очистка поверхности образцов анализируемых материалов путем обработки их в 25% HNO<sub>3</sub> в течение 10 минут.
- Сушка в муфельной печи при температуре 300°С в течение 30 минут.
- Растирание отдельных частиц или соскобов пробы в микроступке из сапфира (рабочий объем 5мм<sup>3</sup> ) до пудры (размер частиц порядка 10<sup>-4</sup> мм).
- В растертую пробу, находящуюся в ступке, добавляют 3-4 мкл дистиллированной воды микропипеткой и размешивают до получения суспензии.
- Перед нанесением пробы ленточка испарителя предварительно подвергается отжигу в высоком вакууме при температуре около 1000<sup>0</sup> С для дегазации и удаления с ее поверхности тяжелых углеводородов. Температура отжига контролируется непосредственно в вакуумной камере прибора по величине тока накала ленточек испарителя (около 1,5 А).
- Микропипеткой из пробы набирают примерно 1мкл суспензии и наносят ее на рабочую поверхность отоженной ленты-испарителя твердотельного источника ионов в виде полоски длиной около 3 мм.
- После нанесения на ленточку проба просушивается под внешним источником тепла до полного испарения влаги и вводится в ионизационную камеру источника ионов масс-спектрометра.
- Подготовленную таким образом пробу помещают в камеру анализатора масс-спектрометра, систему откачивают до давления 2·10<sup>-5</sup> Ра, при этом лента-испаритель прогревается током в 1А при температуре 600<sup>0</sup>С в течение 30 минут до полной дегазации пробы.

По завершению этих процедур масс-спектральная установка готова к проведению измерений изотопного состава урана и плутония в подготовленной пробе. Для этого, путем плавного изменения напряженности магнитного поля призмы в исследуемом диапазоне проводится поочередное измерение интенсивностей ионных токов, соответствующих различным изотомам радионуклидов в анализируемой пробе. Для последующей математической обработки выполняется не менее 5 измерений в режимах повышения и понижения магнитного поля в заданном диапазоне масс.

Вычисление значений отношений радиоактивных изотопов урана (<sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U) и плутония (<sup>239</sup>Pu/<sup>240</sup>Pu) в анализируемой пробе проводится путем усреднения результатов всех измерений (5 автоматических сканирования масс-спектра).

Для проведения анализа методом ТМС на разработанном и созданном в ИЯФ НЯЦ РК призмном масс-спектрометре достаточно иметь навеску пробы 10<sup>-8</sup> г, при наличии в ней определяемых радионуклидов в количестве (10<sup>-13</sup>-10<sup>-14</sup>) г, т.е. (10<sup>-4</sup>-10<sup>-5</sup>) Бк для <sup>239</sup>Pu и (10<sup>-8</sup>-10<sup>-9</sup>) Бк для <sup>235</sup>U. Столь высокая абсолютная чувствительность метода позволяет проводить экспертизу при наличии незначительного количества вещества, такого, как следы урана или плутония на упаковочном материале.

На рис 6, для наглядности, представлена схема определения изотопных отношений урана и плутония в различных ядерных и радиоактивных объектах и материалах методом ТМС.

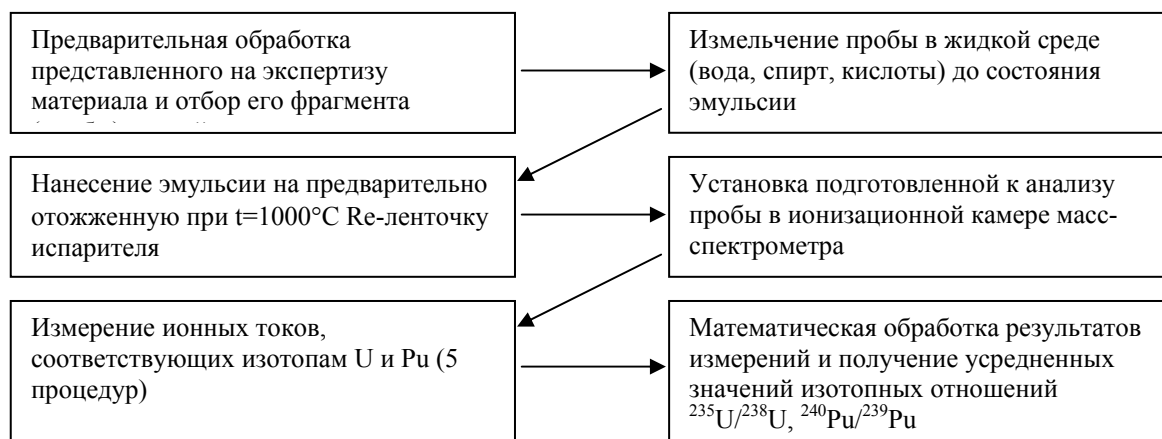


Рис. 6. Схема определения изотопных отношений урана и плутония в различных объектах и материалах методом термоионизационной масс-спектрометрии

По результатам этих разработок составлена и утверждена методическая инструкция МИ-03-16-02-2011 «Порядок определения изотопного состава урана ( $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ ) и плутония ( $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ ) методом термоионизационной масс-спектрометрии».

Разработанный и представленный в подготовленных и утвержденных инструкциях аппаратурно-методический комплекс является универсальным и позволяет решать широкий круг задач, связанных с экспертизой материалов и объектов (содержащих уран или плутоний) различного вида. Так, при проведении экспертизы материалов и объектов, содержащих значительное количество урана (например, топливные таблетки), может быть успешно использован относительно низкочувствительный, но характеризующийся высокой экспрессностью, метод ГС. При проведении экспертизы объектов с малым количеством анализируемого материала (например, следы урана или плутония на упаковочном материале) необходимо использовать более трудоемкие (особенно, на стадии пробоподготовки) методы МС-ИСП или ТМС, отличающиеся более высокой абсолютной чувствительностью, вплоть до  $10^{-14}$  г.

#### **Список использованной литературы**

1. Лотар Кох. Следы доказательства. Судебная экспертиза и незаконный оборот ядерных материалов // Бюллетень МАГАТЭ. – 2003. - № 45/1. – с. 21-23.
2. Василенко О.Н. Радиационная экология / О.Н. Василенко. – М.: Медицина, 2004. – 216 с.
3. Суслин В.П. Проблемы радиационного терроризма // АНРИ. -2006. - № 1 (44). – с. 14-17.
4. Поттер У. Проблемы ядерной безопасности в постсоветских государствах. Ядерное распространение. // Периодический сборник материалов и документов. – М., 1994. – № 4. – С.5-12.
5. Караваев В.Б. Потерян, украден или выброшен...// Экология и жизнь. – 2010. - № 4(101) .- с.76-78.
6. Школьник В.С., Жанткин Т.М. Политика Республики Казахстан в области нераспространения ядерного оружия. // Тезисы докладов Международной конференции по проблемам нераспространения ядерного оружия. Алматы-Курчатов. – 1997. – С.3-4.
7. Жанткин Т.М. Обеспечение режима нераспространения в Республике Казахстан. // Тезисы докладов Международной конференции по проблемам нераспространения ядерного оружия. Алматы-Курчатов. – 1997. – С.11.
8. Закон Республики Казахстан № 416 от 13 июля 1999 г. «О борьбе с терроризмом».
9. Закон Республики Казахстан № 154-ХІІІ от 15.09.94 г. «Об оперативно-розыскной деятельности».
10. Тулеушев А.Ж., Чақров П.В., Солодухин В.П., Позняк В.Л., Якушев Е.М., Амиров А.А. Методическое обеспечение работ по экспертизе ядерных и радиоактивных материалов в ИЯФ НЯЦ РК. // Тезисы Международной конференции «Ядерная энергетика Республики Казахстан» Курчатов. Казахстан. – 2007. – С.92.
11. Тулеушев А.Ж., Чақров П.В., Солодухин В.П., Глущенко В.Н., Позняк В.Л., Якушев Е.М., Назаренко Л.М., Желтов Д.А. Экспертиза ядерных и радиоактивных материалов в ИЯФ НЯЦ РК // Доклады 7-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика». Алматы. Казахстан. – 2010. – с. 405-409.
12. Тулеушев А.Ж., Чақров П.В., Солодухин В.П., Глущенко В.Н., Позняк В.Л., Быченко А.Н., Желтов Д.А., Якушев Е.М., Назаренко А.М. Развитие экспертных работ в ИЯФ НЯЦ РК // Тезисы 8-ой Международной конференции «Ядерная и радиационная физика». Алматы. Казахстан. – 2011. – с. 238.
13. Solodukhin V.P., Poznyak V.L., Kazachevskiy I.V., Knyazev B.B, Lukashenko S.N., Khazhekber S. Some peculiarities of the contamination with radionuclides and toxic elements of the Syrdarya river basin, Kazakhstan // Journal of Radioanalytical and Nuclear chemistry. – 2004. – Vol.259, № 2. – P.245-250.
14. Kazachevskiy I.V., Lukashenko S.N., Chumikov G.N., Chakrova E.T., Smirin L.N., Solodukhin V.P., Khazhekber S., Berdinova N.M., Ryazanova L.A., Bannyh V.I., Muratova V.M.. Combined radiochemical procedure for determination of Plutonium, Americium and Strontium-90 in the soil samples from SNTS // Czechoslovak Journal of Physics. – 1999. - Vol.49. - Suppl.S1. - P. 445-460.
15. Якушев Е.М., Назаренко Л.М., Казачевский И.В., Солодухин В.П., Хажекбер С. Установка для масс-спектрометрического определения изотопного состава урана и плутония в объектах окружающей среды // Радионуклидное загрязнение территории Семипалатинского испытательного полигона (Материалы научно-практической конференции по Проекту МНТЦ К-053). Алматы. – 1999. – С.103-113.

## СОСТОЯНИЕ И ПРИОРИТЕТЫ РАЗВИТИЯ ТЕХНОЛОГИЙ МОНИТОРИНГА РАДИАЦИОННО-ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ ОБСТАНОВКИ И ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВРЕДНЫМИ ХИМИЧЕСКИМИ СОЕДИНЕНИЯМИ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ В РАЙОНЕ СИП

Артемов О.И.<sup>1</sup>, Стебельков В.А.<sup>2</sup>, Газиев Я.И.<sup>2</sup>, Гордеев С.К.<sup>3</sup>,  
Игнатенко Г.К.<sup>4</sup>, Газиев И.Я.<sup>5</sup>

<sup>1</sup>Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

<sup>2</sup>НП “Лаборатория анализа микрочастиц”, Москва, Россия

<sup>3</sup>ГУП Мос. НПО “Радон”, Москва, Россия

<sup>4</sup>ИАТЭ НИЯУ МИФИ, Обнинск, Россия

<sup>5</sup>ГУ НПО “Тайфун”, Обнинск, Россия

В ИРБЭ разработаны методы отбора и анализа многочисленных проб различных объектов природной среды. Проведено более 20000 гамма-спектрометрических, радиохимических и других анализов отобранных проб. Накоплен огромный фактический материал по радиозоологической обстановке на территориях бывшего СИП и приграничных районов в части, относящейся к <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr. Объём такой информации, полученной для <sup>235</sup>U, <sup>241</sup>Am и дозобразующих изотопов плутония вследствие технических сложностей её получения, естественно, был существенно меньший [1; 2; 3]. В целом, в ИРБЭ совместно с другими организациями Национального ядерного центра Казахстана при сотрудничестве с учёными других стран практически полностью решена проблема получения всех основных характеристик текущей радиационно-экологической обстановки в районе СИП. Выявлены все значимые в научно-практическом отношении зоны этого района и процессы значительной миграции радиоактивных загрязнений на контролируемых территориях. Во многих случаях механизмы этой миграции изучены достаточно хорошо в целях долгосрочного прогноза радиозоологических последствий. Однако, имеются и исключения из подобных случаев. Необходимо в ближайшие годы уделить повышенное внимание значительному развитию технологий мониторинга множественных путей миграции в окружающей среде техногенных радионуклидов и особенно плутония.

В настоящее время при выборе приоритетов развития технологий мониторинга радиационно-экологической обстановки в районе СИП на ближайшие годы важно учесть опыт проведения ИРБЭ специальных исследований по проектам МНТЦ. В соответствии с программой работ по проекту К-928, в первую очередь, была разработана методология исследований радиоактивного загрязнения системы “атмосфера-подстилающая поверхность” и оценок радиационных рисков для населения Семипалатинского региона. В итоге, были разработаны экспериментальные методы модельных исследований интенсивного техногенного пылеподъёма и степных пожаров на площадках П-2Г и П-4А на территории бывшего СИП, выполнены запланированные модельные полевые исследования и проанализированы их результаты [1,2]. Параллельно проводились исследования техногенного радиоактивного загрязнения приземного слоя атмосферы в г. Курчатове путём отбора и анализа радионуклидного состава проб атмосферных аэрозолей.

Во время эксперимента по интенсивному техногенному пылеподъёму на площадке П-2Г для высот отбора проб радиоактивной пыли 1-1,5 м были получены данные об объёмных активностях <sup>239,240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am и <sup>137</sup>Cs в приземной атмосфере в зоне контрольных наблюдений. Эти данные представлены в таблице 1.

**Таблица 1.**

Объёмные активности (q) <sup>239,240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am и <sup>137</sup>Cs в приземной атмосфере в приграничной к радиоактивному “пятну” зоне наблюдений на площадке П-2Г

Радионуклид	q, Бк·м <sup>-3</sup>
<sup>239,240</sup> Pu	(0,40±0,08) [(0,4±0,1)·10 <sup>-5</sup> ]
<sup>241</sup> Am	(2,3±0,6)·10 <sup>-2</sup> [не опр.]
<sup>137</sup> Cs	(8,3±1,6)·10 <sup>-3</sup> [≤0,2·10 <sup>-5</sup> ]

Примечание. В квадратных скобках – объёмные активности <sup>239,240</sup>Pu и <sup>137</sup>Cs, наблюдавшиеся ИРБЭ в атмосферном воздухе г. Курчатова с 22.05.06 г. по 08.07.06 г. По порядкам их величин они рассматриваются в качестве реперов региональных “фоновых” уровней загрязнения приземной атмосферы в летние месяцы в районе расположения бывшего СИП.

Из таблицы видно, что объёмная активность <sup>239,240</sup>Pu в атмосферном воздухе в зоне наблюдений во время полевого эксперимента по пылеподъёму 19.07.06 г. на 5 порядков превышала его ОА в воздухе, наблюдавшуюся в г. Курчатове (на “фоновом” участке) также в летний период.

Большое внимание было уделено оценкам пожизненных радиационных рисков для населения Семипалатинского региона с учётом возрастной зависимости коэффициентов риска и рационов. Расчёты проводились (проф. И.И.Крышевым и д.б.н. А.И.Крышевым) в соответствии с методикой Международной комиссии по радиационной защите (ICRP, 1990) [2].

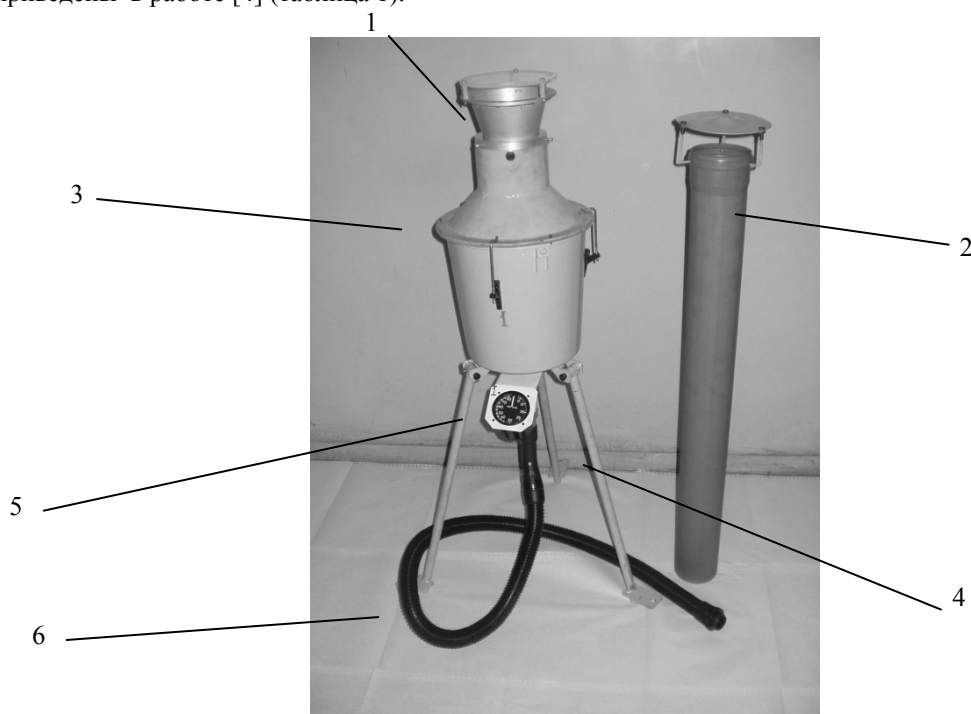
В ближайшие годы необходимо уделить повышенное внимание значительному развитию технологий мониторинга множественных путей миграции радионуклидов в окружающей среде и, особенно в приземной атмосфере. Здесь возможно использование кооперации с учёными России. Так, в Лаборатории анализа микрочастиц

(ЛАМ) разработаны высокочувствительные и высокоточные радионуклидные методы анализа для таких технологий. Проведённые там анализы проб окружающей среды, содержащих плутоний показали:

- содержание плутония, равное 1 пг и больше, определяется с относительной погрешностью 2...3%;
- содержание от 100 фг до 1 пг с относительной погрешностью около 10%;
- содержание, равное десяткам фемтограммов, оценивается с точностью до порядка величины.

В 2011г. в ЛАМ были проведены масс-спектрометрические измерения содержания  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в двух пробах радиоактивных аэрозолей, отобранных 19.07.06 г. в приземной атмосфере во время полевого эксперимента по интенсивному техногенному пылеподъёму на площадке П-2Г [4]. Пробы отбирались методом прокачки атмосферного воздуха через фильтры ФПП-15-1,5. Последние помещались на фильтродержатели пробоотборных колонок приборов ПАП-1К. Фотографии колонок и воздухозаборников ПАП-1К показаны на рисунке 1 [5].

Пробы отбирались на высоте 1,5 м от поверхности земли в течение примерно одного часа. Побудителями расхода воздуха в каждом из этих приборов служили пылесосы “Тайфун-1200”. Объёмная производительность пробоотборника ПАП-1К составляла  $75 \text{ м}^3/\text{ч}$  [5]. Отборы отмеченных выше проб производились на ближнем рубеже к зоне пыления. На том же рубеже вблизи к пробоотборникам ПАП-1К аналогичные аэрозольные пробы отбирались трёхканальным аэрозольным пробоотборником ПАП-3К, объёмная производительность которого была равна  $100 \text{ м}^3/\text{ч}$  [5]. Полученные с помощью трёхканального аэрозольного пробоотборника ПАП-3К пробы анализировались методами гамма-спектрометрического и радиохимического анализов. Проанализирован также (Мос.НПО”Радон”) ряд проб радиоактивных аэрозолей, отобранных на площадке П-2Г, с использованием пробоотборника импакторного типа РМ-10 [5]. Они представляют собой пробы различных по аэродинамическим диаметрам частиц отдельных фракций исследуемых аэрозольных продуктов техногенного пылеподъёма на указанной площадке. Результаты анализов приведены в работе [4] (таблица 1).



1 и 2 – сменные воздухозаборники; 3 – пробоотборная колонка;  
4 – тренога; 5 – расходомер воздуха; 6 – шланг к побудителю расхода воздуха.

Рисунок 1. Фотография воздухозаборников и пробоотборной колонки полевого аэрозольного пробоотборника ПАП-1К

В ЛАМ разработаны технологии сочетания фронтального отбора проб радиоактивных атмосферных аэрозолей с помощью триад лёгких переносных пробоотборников “Лотос” и описанной выше методики масс-спектрометрических измерений содержания в исследуемых пробах  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в целях контроля ядерной деятельности по заданным ЛАМ программам МАГАТЭ. Рисунок 2 иллюстрирует применение триады “Лотосов” для фронтального отбора проб техногенных радиоактивных аэрозолей вблизи источника их интенсивного поступления в приземный слой атмосферы. Для использования ИРБЭ в будущем пробоотборников “Лотос” при исследованиях процессов радиоактивного загрязнения атмосферы и подстилающей поверхности на территории СИП можно ограничиться приобретением ИРБЭ в России двух триад эти пробоотборников вместе с двумя бензоэлектрическими агрегатами.



Распределения объёмных активностей  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{238}\text{Pu}$  по фракциям частиц различных размеров (диаметров  $d_1$ ) аэрозольной составляющей продуктов техногенного пылеподъёма на “радиоактивном пятне” площадки П-2Г в зоне контрольных наблюдений

$d_1$ , мкм	Объёмные активности, Бк/м <sup>3</sup>			
	$^{90}\text{Sr}$	$^{137}\text{Cs}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}$
>10	1,7 E-2	1,7 E-3	2,2 E-2	2,9 E-3
<10	1,9 E-2	1,8 E-3	7,2 E-3	6,6 E-4
10-7,2	4,8 E-3	<МДА	<МДА	<МДА
7,2-3,0	<МДА	1,0 E-3	<МДА	<МДА
3,0 -1,5	1,2 E-2	0,8 E-3	4,2 E-3	4,0 E-4
1,5-0,95	2,2 E-3	<МДА	1,4 E-3	1,3 E-4
0,95-0,49	<МДА	<МДА	1,6 E-3	1,3 E-4
<0,49	<МДА	<МДА	<МДА	<МДА



Рисунок 2. Иллюстрация возможности использования триады пробоотборников “Лотос” для фронтального отбора проб атмосферных радиоактивных аэрозолей вблизи источника их интенсивного поступления в атмосферу и их осаждения на подстилающей поверхности

Особо важно в настоящей работе отметить следующее. В процессе выполнения этого проекта МНТЦ было установлено, что базовые технологии проведения ИРБЭ долговременных полевых радиационно-экологических и радиобиологических исследований на территории СИП нуждаются в дальнейшем существенном развитии. Прежде всего это заключение относится к методам изучения процессов вторичного аэрального загрязнения биологически значимой фракцией радиоактивных выпадений указанной территории, в частности, площадок П-2Г и П-4А во время полевых экспериментов на этих площадках.

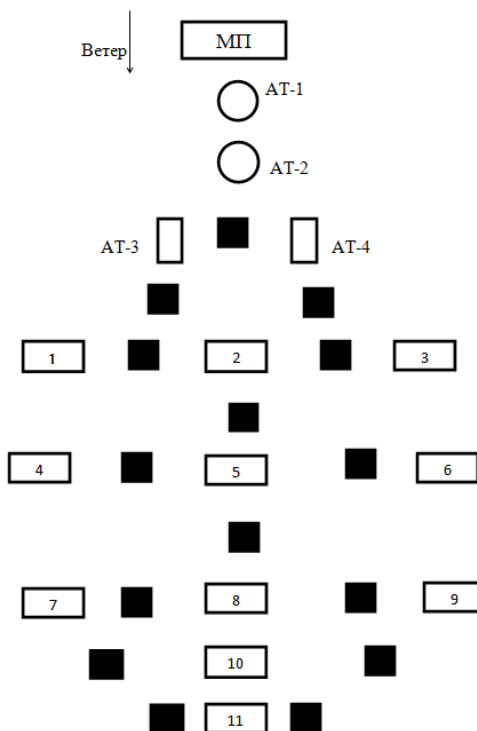
Необходимо в ближайшее время продолжить и завершить начатые ранее разработки в ИАТЭ НИЯУ МИФИ компактных полевых генераторов грубо- и тонкодисперсных аэрозолей, имитирующих биологически значимые фракции радиоактивных выпадений различной дисперсности. Они должны будут наблюдаться во время полевых исследований на указанных площадках исследований в будущем. Параллельно следует разработать три метровые и одну трёхметровую аэродинамические трубы открытого типа. Внутри них должны располагаться генераторы аэрозольных трассеров биологически значимых фракций техногенных атмосферных микропримесей, меченых различными радионуклидами. Две из трёх метровых труб предназначаются для экспериментов по аэродинамической эрозии поверхностного слоя почвы и ветровому подхвату почвенных частиц. В штатном режиме эксплуатации аэрозольных генераторов планируется выбрасывать одновременно на высоты 3 м и 1,5 м аэрозоли, меченые различными радионуклидами. Первая из указанных высот выброса радиоактивных аэрозолей (3 м) должна оставаться постоянной во время всех экспериментов. Вторая высота в ряде случаев может уменьшаться до 0,3 м при моделировании ветрового переноса пылевой фракции почвенных частиц в приповерхностном слое атмосферы при различных значениях высоты слоя шероховатости подстилающей поверхности. Как известно, эта высота может изменяться, например, в зависимости от высоты, поверхностной плотности, состава и структуры растительного покрова почвы.

На первом этапе полевых исследований целесообразно использовать аэрозоли-трассеры с дисперсными фазами, нерастворимыми и растворимыми в воде. По условиям их получения они могут содержать  $^{141}\text{Ce}$ ,  $^{51}\text{Cr}$ ,

$^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$  и  $^{212}\text{Pb}$ , содержание которых в пробах объектов природной среды могут определяться с высокой чувствительностью гамма-спектрометрическим методом и периоды полураспада которых являются сравнительно небольшими.

На втором этапе подобных полевых исследований можно будет обработать и использовать метод получения грубодисперсных аэрозолей – трассеров ближних радиоактивных выпадений путём распыления воздушно-сухих проб почвы, отобранных на площадке П-4А и подготовленных для проведения экспериментов на площадке П-2Г. Равным образом, грубодисперсные аэрозоли, полученные таким же путём из отобранных на площадке П-2Г проб почвы можно и нужно будет использовать в качестве трассеров для проведения полевых экспериментов на площадке П-4А.

На рисунке 3 представлен один из возможных вариантов размещения на технических средств и пробоотборников радиоактивных выпадений, которые предназначены для выполнения полевых экспериментов как на площадке П-2Г, так и на площадке П-4А.



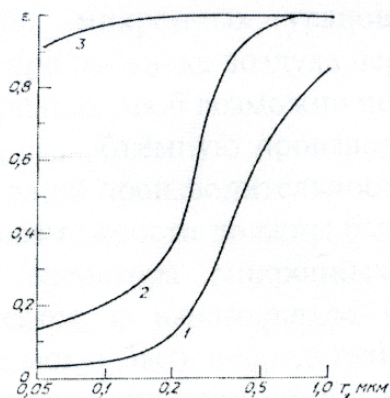
МП – метеоплощадка; АТ-1 и АТ-2 – разновысотные источники выбросов источников трассеров в атмосферу; АТ-3 и АТ-4 – источники выбросов в приповерхностный слой атмосферы; □ – пробоотборники атмосферных выпадений; (1; 3; 4; 6; 7 и 9 – “лотосы”; 2 и 5 – “ПАП-1К”; 8 – “ПАП-3К”; 10 – “РМ-10” и 11 – “Тайфун-4К”.

Рисунок 3. Схема расположения на площадке П-4А технических средств для проведения трассерных экспериментов по аэральному радиоактивному загрязнению окружающей среды

В ближайшие годы в пробоотборниках, указанных на рисунке 3, при отборах в атмосфере аэрозольных частиц с эффективностью, практически независимой от их размеров, должны использоваться фильтры Петрянова (ФП) типа ФПП-15-1,5 и ФПА-15-1,5 в рамках традиционных технологий их применения. Это основной режим эксплуатации рассматриваемых воздухофильтрующих аэрозольных пробоотборников. Однако, при проведении на экспериментальных площадках фундаментальных исследований по проблеме переноса в системе “атмосфера-подстилающая поверхность - сельхозугодия и сельскохозяйственная продукция” тонкодисперсной составляющей биологически значимой фракции радиоактивных выпадений появится необходимость использования в этих пробоотборниках таких, например, как трёхслойных пакетов фильтров ФП: ФПА-70-0,1 (первый по фильтруемому потоку воздуха фильтр), ФПА-70-0,4 (второй фильтр) и, наконец, ФПА-15-2 (третий фильтр) [6]. Эффективности □ улавливания аэрозольных частиц первым и вторым фильтрами существенным образом зависят от размеров частиц. Эти зависимости, отнесённые к скорости прокачки воздуха 1 м/с при нормальных атмосферных условиях плотности частиц  $\rho=1,6 \text{ г/см}^3$  использованных при измерениях эффективностей □ калибровочных аэрозолей, показаны на рисунке 4.

Что касается эффективности улавливания аэрозольных частиц фильтром ФПА-15-2 при отмеченной скорости прокачки воздуха, то она слабо меняется в пределах от 95% до практически 100% (рисунок 5). Особая ценность такого метода отбора проб тонкодисперсных радиоактивных аэрозолей заключается в том, что он в принципе позволяет простым способом получать экспериментальные данные об основных дисперсных и ядерно-физических характеристиках этих аэрозолей. Причём, для отбора их проб могут применяться высокопроизводительные воздухофильтрующие установки. При планируемых полевых экспериментах это будет ВФУ “Тайфун-К”, объёмная производительность которого составляет  $600 \text{ м}^3$ . ВФУ типа “Тайфун” с объёмными производительностями от  $600 \text{ м}^3/\text{ч}$  до  $3000 \text{ м}^3/\text{ч}$  используются в пяти стационарных постах радиационного контроля (СПРК) ГУП Мос. НПО “Радон” радиоактивности атмосферного воздуха в Москве. Эти ВФУ располагаются в защитных домиках. Забор атмосферного воздуха осуществляется через окна с многостворчатыми ставнями (жалюзи). Отфильтрованный воздух выбрасывается

в выходной воздухопровод, проходящий через крышу, так, чтобы этот воздух не попадал в воздухозаборные окна. Для интегрального и фракционного отборов проб радиоактивных аэрозолей применяются фильтры ФПП-15-1,5 и трёхслойные пакеты фильтров ФП (ФПП-70-0,15; ФПП-15-0,25 и ФПП-15-1,5) соответственно. По ориентировочным оценкам принимается, что жалюзи отсекают частицы диаметрами более 10 мкм. Причём, считается, что на первом фильтре пакета отбираются пробы частиц диаметрами от 0,8 мкм до 10 мкм, на втором – от 0,2 мкм до 0,8 мкм, на третьем – менее 0,2 мкм. Фильтры с пробами аэрозольных частиц анализируются гамма-спектрометрическим методом на гамма-спектрометре типа “Canberra”. Время отдельного измерения составляет 3000 с, но увеличивается в случае необходимости снизить величину минимального детектируемой активности радионуклида. Результаты измерения заносятся в электронную базу данных вместе с характеристиками условий отбора проанализированных на гамма-спектрометре проб.



r – радиусы частиц

Рисунок 4. Эффективности  $\epsilon$  улавливания аэрозольных частиц различных размеров фильтрующими материалами НИФХИ при скорости фильтрации воздуха 1 м/с и плотности частиц  $1,6 \text{ г/см}^3$  при нормальных атмосферных условиях

При мониторинге радиоактивности атмосферного воздуха в Москве приходится контролировать в районах расположения постов СПРК объёмные активности как аэрозольной составляющей  $^{131}\text{I}$ , так и его газовой составляющей в приземном слое атмосферы. В этих целях в пробоотборниках СПРК используются двухслойные пакеты фильтров, предназначенных для последовательного улавливания в потоках фильтруемого атмосферного воздуха радиоактивных аэрозолей (фильтр ФПП-15-1,5) и газовой фазы  $^{131}\text{I}$  (фильтр ФПУА).

Описанная выше технология контроля радиоактивности приземного слоя атмосферы в Москве позволила получить в текущем году важные данные о периоде времени и особенностях прохождения через территорию города воздушных масс, загрязнённых радиоактивными продуктами аварии на японской АЭС “Фукусима-1”. Оно началось 23.03.11 примерно через две недели после аварии на этой АЭС (11.03.11 г) в соответствии условиями атмосферного переноса продуктов аварии. Как известно, до этого они наблюдались в атмосфере на территориях США и различных европейских стран в процессе их распространения в тропосфере Северного полушария Земли. Максимумы объёмных активностей, содержащихся в этих продуктах радионуклидов, наблюдались 4-5 апреля этого года практически во всех районах Москвы. Отмеченные продукты идентифицировались по результатам измерений объёмных активностей в приземной атмосфере  $^{131}\text{I}$ ,  $^{132}\text{Te}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{136}\text{Cs}$  и  $^{137}\text{Cs}$  в районах расположения СПРК Мос. НПО “Радон”. Характерное для этих продуктов отношение объёмных активностей в атмосферном воздухе  $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$  составляло  $1,4 \pm 0,2$ . Были получены данные о дисперсном составе аэрозолей  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  и  $^{131}\text{I}$ , содержащихся в исследованных продуктах мартовской аварии на АЭС “Фукусима-1”. Относительные активности отмеченных радионуклидов, приходящиеся на фракцию частиц с диаметрами от 0,8 мкм до 10 мкм, были большими, чем относительные активности этих радионуклидов, приходящиеся на фракции частиц с диаметрами от 0,2 мкм и менее 0,2 мкм.

В целом, продукты аварии на АЭС “Фукусима-1”, произошедшей 11.03.11 г., наблюдались в атмосферном воздухе в Москве в период с 23 марта по 29 апреля текущего года. Полученный в этот период большой объём данных о влиянии этих продуктов на радиационную обстановку в городе будет опубликован в одном из очередных номеров российского журнала “Атомная энергия”.

В итоге на основании выполненных НПО “Радон” исследований в указанный период был сделан вывод о том, величины объёмных активностей наблюдавшихся в приземной атмосфере в Москве радиоактивных продуктов аварии на АЭС “Фукусима-1” не представляли опасности для населения Москвы и не требуют проведения дополнительных мер по обеспечению его радиационной безопасности.

Необходимо отметить следующее. В будущем подобные наблюдения могут быть востребованы и для Казахстана. В самое ближайшее время возможно ИРБЭ подготовиться к их проведению в г. Курчатове в случаях возникновения в этом необходимости. Нужные для этого технические средства и кадры в ИРБЭ имеются. Кроме того, для развития таких технологий могут быть использованы деловые связи с российскими коллегами. В России интенсивно развивались в прошлом и продолжают развиваться в настоящее время технологии эколого-геофизических исследований дальнего переноса в атмосфере радиоактивных продуктов крупных аварий на радиационно-опасных объектах (РОО) и оценок радиоэкологических последствий загрязнения этими продуктами атмосферного воздуха, подстилающей поверхности и биоты на обширных территориях. В частности, такие технологии можно будет

использовать для решения проблем оценок доз облучения населения Казахстана и ущерба его природным ресурсам при трансграничном переносе на территорию республики радиоактивных продуктов радиационных аварий.

В заключение необходимо обратить внимание ещё на следующее. Нужно использовать имеющиеся и серьёзные потенциальные возможности ИРБЭ для активного участия в решении проблемы развития технологий мониторинга загрязнения атмосферного воздуха канцерогенными радионуклидами и вредными химическими соединениями, включая бенз(а)пирен, в районах Казахстана и в первую очередь в районе СИП. Целесообразная в этих условиях научно-методическая поддержка ИРБЭ российскими коллегами вполне технически осуществима.

#### **ЛИТЕРАТУРА**

1. Артемьев О.И. Методы исследований физических характеристик атмосферных аэрозолей и пылевых фракций грунта на радиоактивно загрязнённых территориях / О.И. Артемьев, И.Я. Газиев, С.К. Гордеев, А.Ю. Осинцев // Семипалатинский испытательный полигон. Радиационное наследие и проблемы нераспространения: доклад на II Междунар. научно-практической конф., 6-8 сентября 2005 г. – Курчатова: ИРБЭ, 2005. - Т. 1. - С. 47-53.
2. Артемьев О.И. Комплексные исследования радиоактивного загрязнения системы “атмосфера – подстилающая поверхность” и оценки радиационных рисков для населения Семипалатинского региона / О.И. Артемьев, А.Ю. Осинцев, Я.И. Газиев [и др.]. // Вестник НЯЦ РК. – Курчатова: НЯЦ РК, 2007. - Вып. 4. - С. 44-52.
3. Будыка А.К. Выбор параметров фильтрации атмосферных аэрозолей в зависимости от их дисперсного состава / А.К. Будыка, Б.И. Огородников, И.В. Петрянов // Ядерно-физические методы анализа в контроле окружающей среды: труды III Всесоюзного совещания. – Л.: Гидрометеиздат, 1987. - С. 128-136.
4. Гордеев С.К. Стационарные посты радиационного контроля – система наблюдений радиоактивных аэрозолей в г. Москве / С.К. Гордеев, Г.Л. Агаджанов, В.Н. Ищенко [и др.]. // Радиоактивность при ядерных взрывах и авариях: труды Междунар. конф., Москва 5-6 декабря 2005 г. - СПб: Гидрометеиздат, 2006. - Т. 2. - С.110-116.

### **ТЕРМОЛУЧЕВАЯ ОБРАБОТКА ТВЕРДОТЕЛЬНОГО ДЕТЕКТОРА ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ НА ОСНОВЕ ОКСИДА АЛЮМИНИЯ**

Соловьев С.В.<sup>1</sup>, Мильман И.И.<sup>1</sup>, Моисейкин Е.В.<sup>1</sup>, Сюрдо А.И.<sup>2</sup>

*1 - УрФУ имени первого Президента России Б.Н. Ельцина, Екатеринбург, Россия,*

*2 – институт промэкологии УрО РАН, Екатеринбург, Россия*

#### **1. Введение**

В современной дозиметрии широко используются кристаллические детекторы на основе анион-дефектного корунда (ТЛД-500К или  $Al_2O_3:C$ ) благодаря их высокой чувствительности, радиационной стойкости, химической инертности и термической стойкости.

Разработанный в УрФУ способ термолучевой обработки кристаллов анион-дефектного корунда позволяет повысить чувствительность детекторов, снизить разброс чувствительности детекторов в формируемых партиях, расширить диапазон регистрируемых доз. Это связано с заполнением глубоких ловушек, конкурирующих с ловушкой ответственной за дозиметрический пик термолюминесценции (ТЛ). Суть метода заключается в облучении кристаллов анион-дефектного корунда светом с длиной волны 200-220 нм при температуре 250-350°C. В результате такой обработки происходит интенсивное заполнение глубоких ловушек и тем самым снижается вероятность захвата носителей заряда ими при последующем облучении. Таким образом, на порядок увеличивается чувствительность детекторов к регистрируемым излучениям [1], а по изменению чувствительности в основном пике можно оценить дозу излучения, накопленную при повышенной температуре [2]. Однако предварительное заполнение глубоких ловушек для подавления конкурирующего захвата носителей не является единственной причиной приобретения отмеченных выше новых ТЛ - свойств детекторов. Как показали наши исследования, параллельно с заполнением глубоких ловушек, термолучевая обработка приводит к изменению спектрального состава ТЛ, связанного с образованием новых центров и перераспределением концентраций центров люминесценции, существующих до обработки [3].

В последнее время в твердотельной дозиметрии интенсивно развиваются методы регистрации поглощенной дозы излучения с использованием оптически-стимулированной люминесценции (ОСЛ) детекторов ТЛД-500К, которые позволяют производить быстрое считывание дозиметрического сигнала люминесценции без нагрева детектора [4]. При этом полагают, что ловушки и центры люминесценции, ответственные за ОСЛ и ТЛ основного пика, имеют одинаковую природу. Поэтому, логично было предположить, что та же самая термолучевая обработка, модифицирующая ТЛ - свойства детекторов ТЛД-500К, будет оказывать существенное влияние и на их ОСЛ - свойства.

Целью настоящей работы является исследование ТЛ и ОСЛ - свойств детекторов ТЛД-500К, модифицированных термолучевой обработкой.

## 2. Образцы и методы

Объектами исследований являлись образцы номинально чистого монокристаллического анион-дефектного корунда цилиндрической формы высотой 1 мм и диаметром 5 мм. Дефекты в анионной подрешетке соединения создавались при выращивании или термообработке кристаллов в восстановительных условиях в присутствии углерода. По данным оптических измерений концентрация F - центров (вакансия кислорода с двумя захваченными электронами) составляла величину  $0,8 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ , а  $F^+$  - центров (вакансия кислорода с одним захваченным электроном) -  $1,4 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ . Образованные таким образом F и  $F^+$  - центры, являются термически стабильными, их концентрация не изменяется заметным образом при нагреве кристаллов до  $1300^\circ\text{C}$ . Спектральный состав ТЛ измерялся после возбуждения образцов при комнатной температуре тестовой дозой УФ излучения при постоянной температуре  $150^\circ\text{C}$ . Ввиду близости выбранной температуры наблюдения затухания ТЛ и температуры самого пика, предполагалось, что данные измерений спектров затухания и спектров ТЛ в основном пике совпадают. Затухание ТЛ при постоянной температуре вблизи пика измерялось на лабораторной автоматизированной установке, позволяющей обеспечить режим линейного нагрева до  $900^\circ\text{C}$  или изотермической выдержки образца при любой температуре из указанного диапазона. Источником УФ излучения являлась ртутная лампа ДРТ-250 с кварцевым объективом. Источником рентгеновского излучения являлся рентгеновский аппарат Eclipse IV Lab Rh (Oxford instruments,  $U_{\text{анод}} = 0-45 \text{ kV}$ ,  $I = 0-45 \text{ mA}$ , Rh – анод). Спектры излучения ТЛ регистрировались монохроматором МСД-1, снабженным фотоэлектронным умножителем ФЭУ-106. Для возбуждения ОСЛ использовался сверхяркий светоизлучающий диод с длиной волны в максимуме излучения 470 нм. Регистрация ОСЛ осуществлялась ФЭУ-142, чувствительного к коротковолновой части спектра, с использованием фильтра УФС-2. Перед каждым измерением производился отжиг образцов при  $900^\circ\text{C}$  в течении 1 мин.

## 3. Результаты и обсуждение

Результаты измерений спектров ТЛ в основном пике при температуре предварительного облучения УФ  $300^\circ\text{C}$  приведены на рис.1. Данные рисунка показывают, что спектральный состав ТЛ существенным образом изменяется в зависимости от температуры и времени облучения. После облучения при  $300^\circ\text{C}$ , в спектре ТЛ присутствуют две полосы 330 и 420 нм, связанные с люминесценцией  $F^+$  и F - центров. В спектре образцов облученных при высокой температуре, полоса свечения  $F^+$  - центров возрастает и становится доминирующей, как это показано на рис. 1.

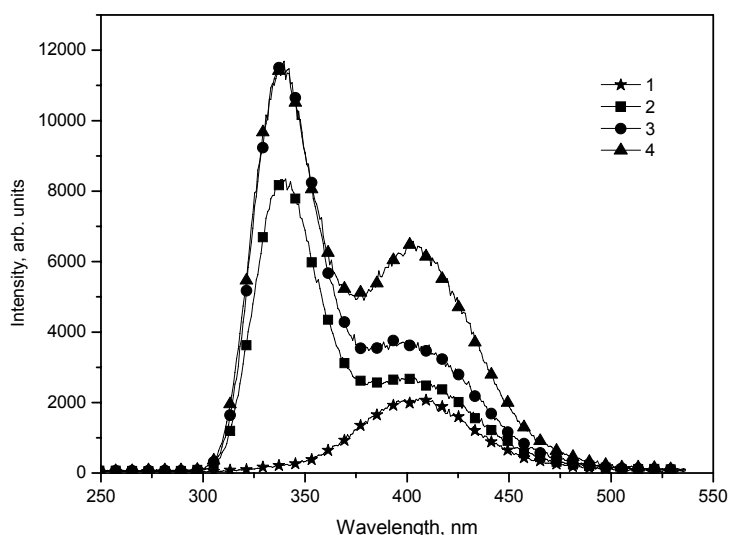


Рис.1 Спектры ТЛ в основном пике образцов анион-дефектного  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ . Время облучения УФ излучением при температуре  $300^\circ\text{C}$ : 1 – 0 мин, исходный; 2 – 1 мин; 3 – 5 мин; 4 – 15 мин

На рис.2 приведены распределения интенсивностей полос свечения 330 (кривая 1), 420 (кривая 2) и 500 нм (кривая 3), в спектрах ТЛ основного пика, после облучения образцов анион-дефектного корунда УФ - излучением в температурном диапазоне  $50 - 900^\circ\text{C}$ . На этом же рисунке пунктирной линией приведены кривые термовысвечивания основного пика около  $200^\circ\text{C}$  и обусловленные глубокими ловушками с пиками  $430$  и  $620^\circ\text{C}$ .

Возбуждение ТЛ производилось УФ - излучением при комнатной температуре для регистрации основного пика и при  $300$  и  $550^\circ\text{C}$  для пиков при  $430$  и  $620^\circ\text{C}$ , соответственно. Результаты, представленные на рис. 2, показывают рост интенсивности ТЛ в полосе 330 нм ( $F^+$  - центры) и синхронное с ним снижение в полосе 420 нм (F - центры) при температуре облучения в диапазоне  $50 - 400^\circ\text{C}$ . Дальнейшее повышение температуры облучения до  $625^\circ\text{C}$  приводит к падению интенсивности в полосе 330 нм, увеличению интенсивностей в полосе 420 нм и появлению полосы 500 нм. В диапазоне температур  $625 - 900^\circ\text{C}$  интенсивность всех трех полос падает до исходного уровня при  $50^\circ\text{C}$ . Стоит отметить, что в диапазоне температур  $175-300^\circ\text{C}$  интенсивность ТЛ в полосе свечения 420 нм становится меньше начальной, что, на первый взгляд, противоречит данным рис.1. Дело в том, что в интервале температур  $200-350^\circ\text{C}$ , при последовательных циклах облучения УФ, вследствие реакции  $F + (h\nu)_T \rightarrow F^+ + e^-$ , наблюдается уменьшение концентрации F - центров до уровня ниже первоначального. Во время отжига образцов в течении 1 минуты при  $900^\circ\text{C}$  перед каждым облучением, происходит опустошение ловушек, а концентрация F - центров не восстанавливается до первоначального уровня. На рис.1 приведены спектры ТЛ при увеличении времени облучения



УФ при повышенной температуре, в этом случае, изменение концентрации F – центров незаметно по отношению к росту ТЛ обусловленного заполнением глубокой ловушки.

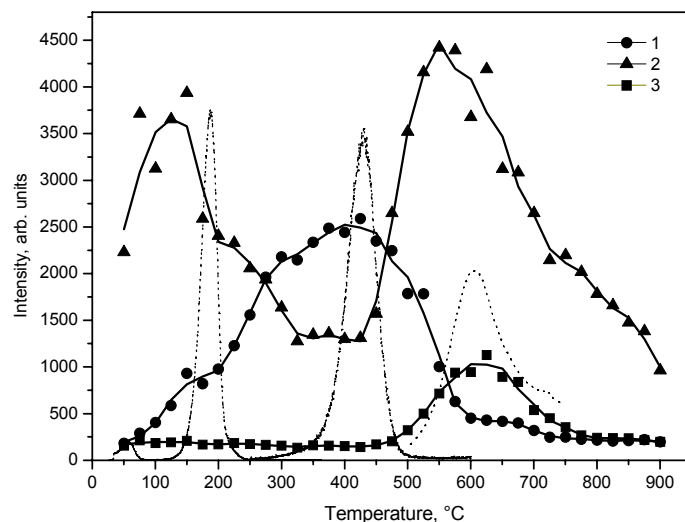


Рис.2 Спектры ТЛ в основном пике образцов анион-дефектного  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  в зависимости от температуры предварительного облучения УФ излучением: 1 - интенсивность свечения в полосе 330 нм; 2 – 420 нм; 3 – 500 нм. Пунктир – ТЛ при 200, 430 и 620°C

Практический интерес представляет повышение чувствительности детекторов ТЛД-500К на основе анион-дефектного корунда путем предварительной термолучевой обработки. Как было показано ранее [1] повышение чувствительности ТЛ после облучения УФ при 300°C связано с заполнением глубокой ловушки вблизи 450°C, данные рис. 1 и 2 свидетельствуют об изменении спектра свечения ТЛ в основном пике. Таким образом, на чувствительность  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  при облучении УФ при повышенных температурах одновременно оказывают влияние два фактора: заполнение ловушки конкурирующей с основной и перераспределение концентраций центров люминесценции. На рис. 3 показано затухание ОСЛ исходного образца  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$ , облученного рентгеном, и затухание ОСЛ после предварительного облучения этого же образца УФ при температуре 400°C в течение 5 секунд.

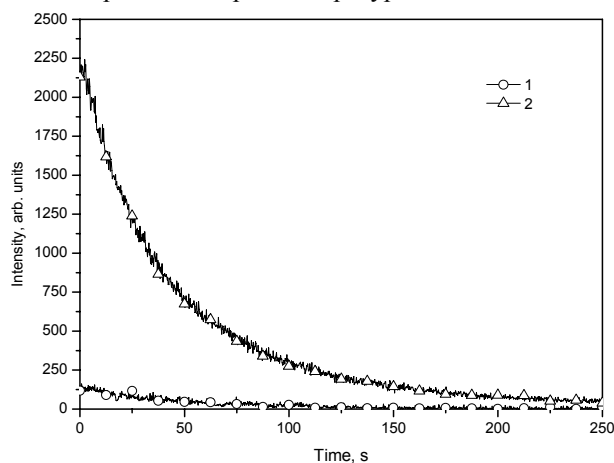


Рис. 3 ОСЛ образца  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  облученного рентгеном в течении 1 минуты, с предварительным облучением УФ при 400°C в течении 5 секунд (2) и без него (1)

После термолучевой обработки при указанных режимах, интенсивность ОСЛ образца выросла на один порядок. Для определения степени влияния каждого из факторов повышения чувствительности нами проведен эксперимент, в котором изучается влияние температуры облучения УФ на чувствительность образца по ОСЛ.

На рис.4 приведены результаты ОСЛ  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  после облучения УФ в температурном диапазоне от 50 до 850°C.

Как видно из рисунка, при температурах от 50 до 150°C наблюдается рост светосуммы ОСЛ относительно исходной, это связано с интенсивным заполнением основной ловушки (совпадает с ростом кривой 2 на рис.2). Падение сигнала ОСЛ при 150-175°C связано с опустошением основной ловушки. При температурах 175-300°C возрастание ОСЛ обусловлено как заполнением ловушки вблизи 450°C, так и увеличением концентрации  $\text{F}^+$  - центров (совпадает с ростом кривой 1 на рис.2). При этом исходная чувствительность  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3\text{:C}$  по ОСЛ возросла более чем на два порядка. Согласно данным рис. 2 максимум интенсивности ТЛ в полосе 330 нм находится вблизи 400-450°C, а на рис.4 в указанном интервале температур светосумма ОСЛ в 2-3 раза меньше максимальной. Можно предположить, что наибольший вклад в рост чувствительности ОСЛ вносит заполнение глубокой ловушки, а не изменение спектра свечения.

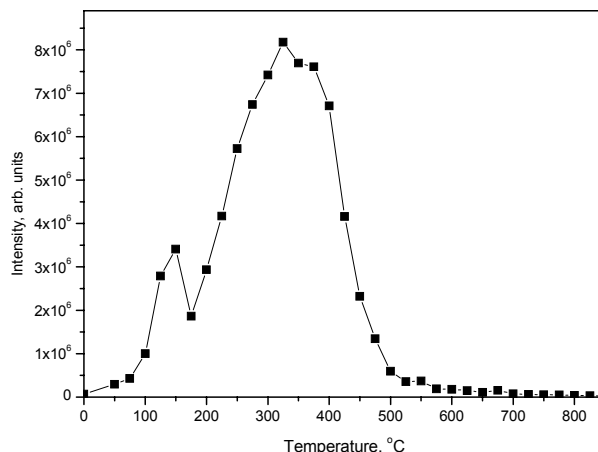


Рис.4 Изменение светосуммы ОСЛ образца  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$  облученного рентгеном в течении 1 минуты от температуры предварительного облучения УФ

#### 4. Выводы

Показано, что происходит значительное изменение интенсивности люминесценции в полосах 330 и 420 нм, максимальное значение которой достигается после облучения при 400 и 650°C соответственно. Причем, после облучения УФ при 300-400°C интенсивность свечения в полосе 330 нм становится больше интенсивности свечения в полосе 420 нм. Установлено, что рост интенсивности люминесценции в полосе 330 нм связан, как с изменением концентрации основных центров свечения, так и с интенсивным заполнением ловушек, конкурирующих с основной - дозиметрической, при температуре облучения 300-400°C. Высказано предположение, что наибольший вклад в рост чувствительности ОСЛ вносит заполнение глубокой ловушки, а не изменение спектра свечения.

Практическим следствием данной работы является возможность повышения интегральной чувствительности детекторов ионизирующих излучений на основе  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$  по выходу ТЛ и ОСЛ.

#### Литература

- [1] Патент РФ № 2229145. Способ обработки вещества твердотельного детектора ионизирующих излучений на основе оксида алюминия / Кортов В.С., Мильман И.И., Никифоров С.В.
- [2] Патент РФ № 2346296 Способ измерения дозы в твердотельных детекторах ионизирующих излучений на основе оксида алюминия, накопленной при повышенной температуре окружающей среды / Мильман И.И., Моисейкин Е.В., Никифоров С.В., Ревков И.Г., Литовченко Е.Н., Соловьев С.В.
- [3] С.В. Соловьев, Е.В. Моисейкин, И.И. Мильман, А.И. Сюрдо. Термо-фотоиндуцированное преобразование спектра ТЛ в дозиметрических кристаллах  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{C}$ . Научный журнал «Физика» №1, 2010. Материалы международной конференции по радиационной физике, новым материалам и информационным технологиям SCORPh-2010. С. 184-190.
- [4] S.W.S. McKeever. Optically Stimulated Luminescence: A Brief Overview. Radiation Measurements (2011), doi:10.1016/j.radmeas.2011.02.016

УДК 577.391:577.4:504.74:636.32/38:539.16

#### ТРАНСУРАНОВЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ В ОРГАНИЗМЕ СЕЛЬСКОХОЗЯЙСТВЕННЫХ ЖИВОТНЫХ ПРИ ИХ РАЗВЕДЕНИИ В УСЛОВИЯХ ИСПЫТАТЕЛЬНОЙ ПЛОЩАДКИ "ДЕГЕЛЕН"

<sup>1</sup>Паницкий А.В., <sup>1</sup>Байгазинов Ж.А., <sup>1</sup>Лукашенко С.Н., <sup>2</sup>Коваль А.П.

<sup>1</sup>Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, г. Курчатов, Казахстан

<sup>2</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан

#### Введение

В настоящее время проводятся комплексные исследования возможности передачи некоторых территорий СИП в хозяйственный оборот. Однако для полной оценки безопасности возможных для передачи территорий не хватает экспериментальных величин необходимых для прогноза возможных концентраций радионуклидов в сельскохозяйственной продукции в случае их получения на исследуемой территории. Имеющиеся в базе данных МАГАТЭ величины, получены по результатам исследований, проведенных на территориях, расположенных в отличающихся от территории СИП природных условиях, и имеющих совершенно другой характер радионуклидного загрязнения, обусловленный, как правило, различными радиационными авариями. В литературе отсутствуют данные о коэффициентах перехода в традиционную для региона сельскохозяйственную продукцию, такую как конина и кумыс, которые занимают важное место в продуктовой корзине питания для местного населения. Так же практически отсутствуют коэффициенты перехода трансурановых радионуклидов  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в сельскохозяйственную



продукцию как растительного, так и животного происхождения. А с учетом роста активности  $^{241}\text{Am}$  за счет распада  $^{241}\text{Pu}$ , а так же значений периодов полураспада трансурановых элементов в долгосрочной перспективе (сотни лет) значимость этих радионуклидов в формировании параметров радиационной обстановки на территории СИП и близлежащих территориях будет возрастать. В мире имеются лишь единичные работы, связанные с изучением перехода плутония и америция, основные результаты, которых внесены в базу данных МАГАТЭ.

Проведение исследований на "экспериментальных фермерских хозяйствах", направленных на получение прогнозных величин перехода радионуклидов в продукцию животноводства имеют большую практическую значимость для оценки дозовых нагрузок на население, проживающее на территории СИП и прилегающих территориях.

## **МЕТОДЫ И МАТЕРИАЛЫ**

**Место проведения исследования.** Исследования проведены на опытно-экспериментальной площадке (ОЭП) "Дегелен", расположенной в юго-западной части бывшего СИП. Для проведения исследования была выбрана штольня №177 с водопроявлением, образованным грунтовыми водами, вытекающими из котловой полости штольни, тем самым формируя радиоактивное загрязнение компонентов окружающей среды почвы, воды, растительности и воздуха. Участок выбран как один из наиболее загрязненных трансурановыми радионуклидами  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ .

**Объекты исследований.** В качестве исследуемых животных использовались овцы казахской курдючной грубошерстной породы ("Едильбаевская"). Все животные были схожие по клиническому состоянию и экстерьерно-конституциональным данным.

Выбор объекта и места исследования обоснован тем, что овцеводство является основным видом сельскохозяйственной деятельности данного региона и то, что вблизи ОЭП "Дегелен" расположено наибольшее количество хозяйств, занимающихся животноводством на территории СИП.

**Схема проведения исследований.** Исследования проводили в условиях стойлового содержания в районе шт. №177. Животные размещались в загоне (4×4 м) с выгульной площадкой (10×10 м) для обеспечения полноценного моциона. Животные были разбиты на две группы (группа - 1 и группа - 2.) по условиям поступления радионуклидов в организм. Животным первой и второй групп скармливался радиоактивно-загрязненный корм (2 кг/сут) и выпаивалась радиоактивно-загрязненная вода (0,9-1,0 л/сут). Животным второй группы в рацион включена радиоактивно-загрязненная почва в количестве 50 г в сутки. Сроки постановки на эксперимент определены схемой эксперимента и составляют 7, 14, 28, 56, 112 суток. После окончания срока выпаса животные забивались с отбором проб тканей (мышечной, костной и кожной) и органов (сердце, печень, легкие, почки) на радионуклидные анализы.

При постановке экспериментальных работ с животными применялись примерные схемы научных опытов, основанные на принципах групп-периодов и пар-аналогов. Для оценки общего физического состояния животных проводился их еженедельный клинический осмотр. Подкормка концентрированными и другими видами кормов не осуществлялась.

Растительность скашивали вдоль берегов радиоактивно-загрязненного ручья (до 180-200 м от начала русла, вытекающего из штольни №177 на расстоянии 2-х метров от центра водотока). Воду, предназначенную для поения, отбирали с начала русла водотока, вытекающего из-под навала, на штольне №177. Почва, используемая для добавления в рацион животных, также отобрана у берега водотока на глубине 0-15 см, очищена от дернины, просеяна через сито размером ячеек 1 мм и тщательно гомогенизирована.

**Радионуклидные анализы.** Лабораторные анализы на содержание радионуклидов в пробах окружающей среды проводились в соответствии с методическими указаниями на поверенной лабораторной аппаратуре. Концентрацию  $^{241}\text{Am}$ , определяли по, содержанию  $^{239+240}\text{Pu}$  – радиохимическим методом.

### **Оценка содержания радионуклидов в растительном корме, воде и почве**

Для оценки концентрации радионуклидов в растительном корме в течение каждой недели ежедневно из суточной массы радиоактивно-загрязненного корма отбиралось по 300 г растительности, из которых формировалась проба растительности массой 2,1 кг (300 г×7 дней), в которой определялся радионуклидный состав. Растения передавались на радиохимические анализы и анализировались без промывания. В итоге, получены результаты по содержанию радионуклидов в растительном корме за каждый недельный период (16 недель) эксперимента.

Значения удельной активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в растительном корме изменялись в пределах 0,5 – 30 Бк/кг.

Активность  $^{241}\text{Am}$  во всех пробах была меньше 1,4 Бк/кг, лишь в трех пробах составила 5, 11 и 12 Бк/кг. При расчете среднеарифметического значения принимали нижний предел обнаружения за значимый результат. Таким образом, среднее арифметическое значение составило 2,8 Бк/кг.

На основании проб растительности, характеризующих недельные этапы эксперимента рассчитано среднесуточное поступление для животных каждого срока, с учетом недельной динамики (Таблица 12).

Удельная активность  $^{241}\text{Am}$  во всех пробах воды, вытекающей из штольни №177 меньше 1,5 Бк/кг,  $^{239+240}\text{Pu}$  в пределах <0,001-2,14 Бк/кг, среднее арифметическое значение составило 0,8 Бк/кг.

Результаты  $\gamma$ -спектрометрического и радиохимического анализа проб почв показали, что удельная активность радионуклидов  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в среднем составляет 950 Бк/кг и 12600 Бк/кг соответственно.

### **Оценка среднесуточного поступления радионуклидов в организм экспериментальных животных**

На основании данных о концентрации радионуклидов в растениях, воде и почве было рассчитано среднесуточное поступление радионуклидов в организм животных. В таблице 1 представлено среднесуточное поступление радионуклидов в организм животных 1 и 2 группы.

Таблица 12. Суточное поступление радионуклидов в группе №1 и группе №2

Поступление $^{239+240}\text{Pu}$ , Бк	Срок эксперимента, суток									
	Группа 1					Группа 2				
	7	14	28	56	112	7	14	28	56	112
Суточное поступление с водой	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8	0,8
Суточное поступление с кормом	60,0	69,0	58,5	42,9	39,0	60,0	69,0	58,5	42,9	39,0
Суточное поступление с почвой	-	-	-	-	-	627,5	627,5	627,5	627,5	627,5
Среднесуточное поступление	60,8	69,8	59,3	43,7	39,8	688,3	697,3	686,8	671,2	667,3
Поступление $^{241}\text{Am}$ , Бк	Срок эксперимента, суток									
	Группа 1					Группа 2				
	7	14	28	56	112	7	14	28	56	112
Суточное поступление с водой	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5	<1,5
Суточное поступление с кормом	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4	8,4
Суточное поступление с почвой	-	-	-	-	-	50	50	50	50	50
Среднесуточное поступление	8,4					58,4				

Таким образом, на основании расчета суточного поступления радионуклидов в организм овец группы №1, можно утверждать, что основная доля  $^{239+240}\text{Pu}$  поступает с растительным кормом. Вклад воды не превышает 3%.

На основании расчета суточного поступления радионуклидов в организм овец группы №2, определено, что основная доля  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  поступает с почвой, а вклад корма и воды в суточное поступление радионуклидов не превышает 13%.

## РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

### Исследование особенностей перехода $^{239+240}\text{Pu}$ в организм овец

**Содержание  $^{239+240}\text{Pu}$  в организме опытных животных.** В таблице 2 представлены данные удельной активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в органах и тканях овец при различных сроках его поступления с различными компонентами окружающей среды.

Таблица 2. Удельная активность  $^{239+240}\text{Pu}$  в органах и тканях овец при различных сроках его поступления с различными компонентами окружающей среды

Органы и ткани	При среднесуточном поступлении с кормом и водой (группа 1)					При среднесуточном поступлении с кормом, водой и почвой (группа 2)				
	Количество дней содержания, сутки					Количество дней содержания, сутки				
	7	14	28	56	112	7	14	28	56	112
	Удельная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в органах, Бк/кг									
сердце	< 0,019	< 0,013	< 0,015	< 0,024	0,0220	< 0,014	0,0380	< 0,015	0,0140	0,0120
печень	< 0,007	0,0130	0,1120	-	0,1390	0,0900	0,3670	0,4600	0,9090	-
почки	< 0,028	< 0,023	< 0,024	0,0580	0,0740	0,0490	0,1330	0,0910	0,1380	0,1210
легкие	0,0170	< 0,007	-	0,0260	0,0110	0,0230	-	0,0230	0,0300	0,0430
селезенка	< 0,022	< 0,096	< 0,065	< 0,071	0,0650	< 0,033	0,0790	< 0,035	0,0720	0,2570
мышцы	< 0,0048	0,0051	0,0069	0,0070	0,0031	0,0049	0,0125	0,0084	0,0162	0,0025
кожа	0,1560	0,0550	0,0440	0,0500	0,0850	0,2390	0,1860	0,2590	0,0650	0,2220
шерсть	0,6000	0,6900	0,1100	0,2700	0,4900	1,3600	2,1900	2,0	1,99	2,20

Примечание: погрешность измерения составляет не более 30%

Наибольшая удельная активность  $^{239+240}\text{Pu}$  отмечена в шерсти, независимо от сроков кормления и составляющих рациона. Как и следовало ожидать, по результатам исследования основные концентрации  $^{239+240}\text{Pu}$  в "мягких" органах были зафиксированы в печени. Активности других органов относительно печени в 2-3 раза меньше.

**Распределение  $^{239+240}\text{Pu}$  в организме овец.** Максимальные концентрации радионуклидов зафиксированы в шерстной ткани. Достаточно ровные значения удельной активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в пределах каждой группы исключают возможность некачественного промывания шерсти. Максимальные содержания радионуклида  $^{239+240}\text{Pu}$  в шерстной ткани, отмеченные для всех экспериментальных животных в каждой группе, говорят о возможности делать оценочные прогнозы возможности присутствия радионуклида  $^{239+240}\text{Pu}$  в других тканях по его наличию или отсутствию в шерсти. При этом отпадает необходимость забоя животного для отбора образцов.

Распределение  $^{239+240}\text{Pu}$  в органах и тканях овец после 112 суток поступления с кормом и водой, приведенное в виде относительной концентрации в тканях и органах выраженной в процентах от суточного поступления, представлено в таблице 3.

Сумма относительных концентраций  $^{239+240}\text{Pu}$ , поступившего в "мягкие" органы для животных группы Б.1. составляет ~ 2,23%, а для животных группы Б.2. составляет ~0,43%. Отсюда видно, что  $^{239+240}\text{Pu}$ , поступивший с кормом и водой усваивается лучше, чем  $^{239+240}\text{Pu}$  поступающий с почвой. Возможно, это связано с тем, что в растениях содержится  $^{239+240}\text{Pu}$  который находится в подвижной или обменной форме, то есть в формах легкодоступных для растений, следовательно, легкоусвояемых, а в почве, основной процент фиксируемого  $^{239+240}\text{Pu}$ , учитываемого при расчете среднесуточного поступления может находиться в прочносвязанной, то есть недоступной для растений форме. С этим может быть связан низкий процент перехода  $^{239+240}\text{Pu}$ , поступающего с почвой.

**Таблица 13.** Распределение  $^{239+240}\text{Pu}$  в органах и тканях овец после 112 суток поступления, выраженное в процентах от суточного поступления

Органы и ткани	Относительная концентрация $^{239+240}\text{Pu}$ в органах и тканях, %	
	при поступлении с кормом и водой (группа Б.1.)	при поступлении с кормом, водой и почвой, (группа Б.2)
сердце	0,055	0,002
печень	0,349	-
почки	0,186	0,018
легкие	0,028	0,006
селезенка	0,163	0,039
мышцы	0,008	0,0004
кожа	0,214	0,033
шерсть	1,231	0,330
Сумма относительных концентраций*	<b>2,234</b>	<b>0,428</b>

\* – без учета активности  $^{239+240}\text{Pu}$  в печени

**Особенность перехода  $^{239+240}\text{Pu}$  при различных условиях и сроках поступления.** На рисунке 1 представлены  $K_{\text{п}}$   $^{239+240}\text{Pu}$  в кожную, шерстную и мышечную ткани, печень, легкие, почки, сердце, селезенку, кожную и шерстную ткань овец групп Б.1. и Б.2., которых кормили различными компонентами окружающей среды экосистем водотоков из штолен ОЭП "Дегелен". Результаты эксперимента показали, что в условиях длительного ежедневного поступления  $^{239+240}\text{Pu}$  в организм овец с различными компонентами окружающей среды, концентрация  $^{239+240}\text{Pu}$  в органах не увеличивается и процесс накопления не зависит от сроков поступления. Лишь в печени отмечена положительная динамика накопления, где в более ранние сроки переход  $^{239+240}\text{Pu}$  проходит интенсивнее, с последующим снижением темпа его накопления, до равновесного состояния (Рисунок 17).

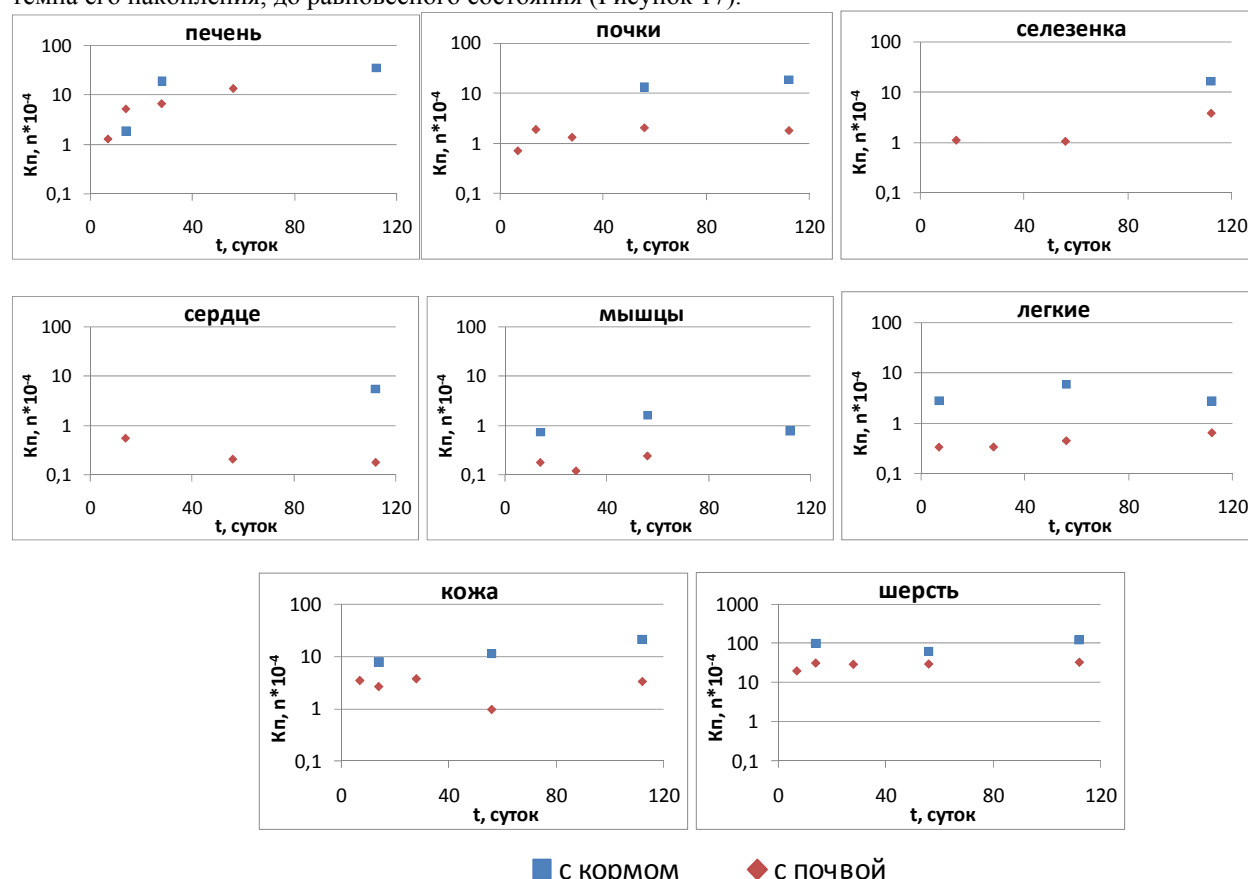


Рисунок 17. Динамика перехода  $^{239+240}\text{Pu}$  в органы и ткани овец (группы Б.1. и Б.2.)

Диапазон коэффициентов перехода  $^{239+240}\text{Pu}$ , полученных в ходе исследований и их средние значения представлены в таблице 4.

Видно, что критическим органом при оценке возможного поступления  $^{239+240}\text{Pu}$  с продукцией овцеводства является печень, это необходимо учитывать при регламентировании содержания данного радионуклида в суточном рационе овец.

**Таблица 14.** Коэффициенты перехода  $^{239+240}\text{Pu}$  в ткани и органы экспериментальных животных

Органы и ткани	При поступлении с кормом и водой, $\times 10^{-3}$				При поступлении с кормом, водой и почвой, $\times 10^{-3}$			
	max	min	Всего значений	сред.	max	min	Всего значений	сред.
сердце	0,55		1	0,55	0,05	0,02	3	0,03
печень	3,49	0,19	3	1,85	1,35	0,13	4	0,67
почки	1,86	1,33	2	1,59	0,21	0,07	5	0,16
легкие	0,59	0,28	3	0,38	0,06	0,03	4	0,04
селезенка	1,63		1	1,63	0,39	0,11	3	0,20
мыш.тк.	0,16	0,07	4	0,11	0,02	0,004	5	0,01
кожа	2,57	0,74	5	1,48	0,38	0,10	5	0,28
шерсть	12,3	1,86	5	8,02	3,30	1,98	5	2,86

Примечание: «-» данных нет

В наших исследованиях общую активность тканей и органов животных группы 2 можно рассчитать следующим образом:

$$A_{\text{орган}} = C_{\text{корм}} \times K_{\text{п}}_{\text{корм}} + C_{\text{почва}} \times K_{\text{п}}_{\text{почва}}, \text{ где}$$

$A_{\text{орган}}$  – активность органа или ткани;  $C_{\text{корм}}$  – среднесуточное поступление с рационом;  $K_{\text{п}}_{\text{корм}}$  – коэффициент перехода из корма;  $C_{\text{почва}}$  – среднесуточное поступление с почвой;  $K_{\text{п}}_{\text{почва}}$  – коэффициент перехода из почвы.

Опираясь на это уравнение, используя полученные в ходе исследования данные, можно рассчитать  $K_{\text{п}}$  из почвы в ткани и органы животных по следующему отношению:

$$K_{\text{п}}_{\text{почва}} = \frac{A_{\text{орган}} - C_{\text{корм}} \times K_{\text{п}}_{\text{корм}}}{C_{\text{почва}}}$$

Исходя из этих соображений, получены следующие значения  $K_{\text{п}}$  радионуклидов из почвы (Таблица).

**Таблица 5.** Оценочные  $K_{\text{п}}$   $^{239+240}\text{Pu}$  из почвы в ткани и органы экспериментальных животных группы 2

Органы и ткани	Средние $K_{\text{п}}$ при поступлении с кормом и водой, $\times 10^{-3}$	Оценочные $K_{\text{п}}$ при поступлении с почвой, $\times 10^{-3}$
сердце	0,55	-
печень	1,85	0,54
почки	1,59	0,059
легкие	0,38	0,02
селезенка	1,63	0,10
мыш.тк.	0,11	0,005
кожа	1,48	0,17
шерсть	8,02	2,22

Полученные оценочные  $K_{\text{п}}$  из почвы в ткани и органы животных группы 2, на 1-2 порядка меньше средних  $K_{\text{п}}$  радионуклидов с кормом и водой, что необходимо учитывать при проведении оценки возможных концентраций радионуклидов в сельскохозяйственной продукции при ее получении на радиоактивно-загрязненной территории.

**Исследование особенностей перехода  $^{241}\text{Am}$  в организм овец**

**Содержание  $^{241}\text{Am}$  в организме опытных животных.** В таблице 6 представлены данные по удельной активности органов овец при различных сроках поступления  $^{241}\text{Am}$  с различными компонентами окружающей среды.

**Таблица 6.** Удельная активность  $^{241}\text{Am}$  в органах и тканях овец при различных сроках его поступления с различными компонентами окружающей среды

Органы и ткани	Среднесуточное поступление с кормом и водой – 8,4 Бк					Среднесуточное поступление с кормом, водой и почвой – 58,4 Бк				
	количество дней содержания, сутки					количество дней содержания, сутки				
	7	14	28	56	112	7	14	28	56	112
	<b>Активность органов, Бк/кг</b>									
сердце	< 0,36	< 0,19	0,46	< 0,23	< 0,21	0,42	0,34	0,54	0,32	< 0,27
печень	< 0,38	нет	< 0,28	0,58	< 0,28	< 0,21	< 0,34	0,56	< 0,26	0,42
почки	< 0,43	< 0,21	< 0,23	< 0,25	< 0,27	0,56	0,57	< 0,24	< 0,25	< 0,32
легкие	< 0,39	нет	0,32	< 0,27	0,30	нет	0,45	0,29	< 0,28	< 0,30
селезенка	0,48	< 0,56	0,74	< 0,41	< 0,46	< 0,30	0,68	0,32	0,29	< 0,51
мышцы	< 0,42	нет	< 0,26	< 0,26	0,32	0,33	< 0,25	< 0,23	< 0,27	< 0,24
кожа	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10	< 0,10
шерсть	нет	нет	нет	нет	нет	нет	нет	нет	нет	нет

### Radiation Ecology

В большинстве случаев удельная активность  $^{241}\text{Am}$  в органах и мышечной ткани была ниже предела обнаружения. Не установлено какого-либо органа, депонирующего  $^{241}\text{Am}$ , что связано с низкими концентрациями радионуклида поступившего в организм. Анализ результатов показывает, что зафиксированные количественные значения связаны с погрешностью аппаратуры. Таким образом, имеющиеся данные позволяют дать лишь оценку максимально возможных Кп  $^{241}\text{Am}$  в органы и ткани овец. Оценочные Кп  $^{241}\text{Am}$  в органы и ткани овец представлены в таблице 7.

**Таблица 7.** Оценочные коэффициенты перехода  $^{241}\text{Am}$  в органы и ткани овец

Органы и ткани	При поступлении с кормом и водой, $\times 10^{-3}$		При поступлении с кормом, водой и почвой, $\times 10^{-3}$	
	Кп	Всего значений	Кп	Всего значений
сердце	<54,8	5	<9,3	5
печень	<69,1	4	<9,6	5
почки	.*	-	<9,8	4
легкие	<38,1	5	<7,7	5
селезенка	<88,1	4	<11,6	5
мыш.тк.	<38,1	5	<5,7	5

Примечание: «-» данных нет

#### оценка допустимого содержания $^{239+240}\text{Pu}$ и $^{241}\text{Am}$ в рационе овец

На основании полученных величин, характеризующих переход радионуклидов  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  возможен расчет допустимого суточного поступления этих радионуклидов с рационом. Однако допустимые уровни содержания этих радионуклидов в пищевых продуктах не регламентируются ни одним документом. Содержание радионуклидов  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в пищевых продуктах не нормируется, однако, ввиду того, что в НРБ-99 (Приложение П-2) предел годового поступления с пищей для населения на порядок меньше, чем аналогичная величина для  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{239+240}\text{Pu}$  –  $2,4 \times 10^3$  Бк/год,  $^{241}\text{Am}$  –  $2,7 \times 10^3$  Бк/год,  $^{90}\text{Sr}$  –  $1,3 \times 10^4$  Бк/год) и с учетом их большой радиотоксичности можно предположить, что допустимые уровни по ним будут на порядок меньше, чем по  $^{90}\text{Sr}$ . Таким образом, согласно СанПиН 4.01.071.03 допустимое содержание  $^{90}\text{Sr}$  в мясе домашних животных 50 Бк/кг. Следовательно, за допустимое содержание  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в мясе домашних животных можно принять 5 Бк/кг. Эту же величину можно принять и для других внутренних органов (печень, почки и т.д.)

Предел содержания радионуклидов в рационе овец (ПДС) можно определить из соотношения:

$$\text{ПДС} = \text{ДУА} / \text{Кп}, \text{ где:}$$

ДУА – допустимая удельная активность радионуклида в сельскохозяйственной продукции;

Кп – коэффициент перехода радионуклидов.

Так как критическим органам по отношению к другим потребляемым в пищу тканям и органам является печень, в расчете используются максимальные Кп радионуклидов из рациона в печень. Для  $^{239+240}\text{Pu}$  Кп в печень –  $3,5 \times 10^3$ , для  $^{241}\text{Am}$  –  $<6,9 \times 10^2$ .

Исходя из приведенных данных, допустимые уровни содержания трансураниевых радионуклидов в суточном рационе при длительном кормлении будут составлять: для  $^{239+240}\text{Pu}$  – 1430 Бк/сут., для  $^{241}\text{Am}$  – <72 Бк/сут. Это означает при норме потребления на данном типе пастбища в 3 кг удельная активность в растениях не должна превышать 476,6 Бк/кг для  $^{239+240}\text{Pu}$  и 24 Бк/кг для  $^{241}\text{Am}$ .

В целом, если не брать за критический орган печень, можно оценить содержание радионуклидов в суточном рационе для получения каждого вида продукции в соответствии с нормами (Таблица). Так же на основании рассчитанных допустимых удельных активностей растений и Кп радионуклидов рассчитанных ранее для разнотравья площадки "Дегелен" легко рассчитать допустимую удельную активность почвы для пастбищ лугового типа, превышение которых повлечет превышение норм в продукции овцеводства (Таблица).

**Таблица 8.** Допустимые значения содержания радионуклидов в рационе овец для различных видов продукции

Вид органа	Допустимые уровни					
	активности радионуклидов в рационе овец, Бк/сутки		удельной активности растений, Бк/кг		удельной активности почвы пастбища, Бк/кг	
	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$	$^{239+240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}$
сердце	9050	<91	3020	30	$5,46 \times 10^6$	$<5,56 \times 10^2$
печень	1430	<72	480	25	$1,37 \times 10^5$	$<3,50 \times 10^2$
почки	2690	<520	896	170	$4,82 \times 10^5$	$<1,78 \times 10^4$
легкие	8400	<130	2800	43	$4,71 \times 10^6$	$<1,15 \times 10^3$
селезенка	3060	<60	1020	20	$6,25 \times 10^5$	$<2,15 \times 10^2$
мышцы	31200	<130	10400	43	$6,49 \times 10^7$	$<1,15 \times 10^3$

В таблице приведены результаты для всех органов, потребляемых в пищу, однако как сказано ранее критическим органом является печень, поэтому нужно использовать результаты, полученные для печени.

Значения удельной активности, в почве приведенные в таблице 8 локализованы в местах непосредственного проведения испытаний ядерного оружия. Это испытательные участки площадки "Опытное поле" П-2, П-7, приустьевые участки штолен с водопроявлениями площадки "Дегелен". Таким образом, при пастьбе вокруг

территории площадки "Дегелен", и даже в ее пределах (при условии запрета доступа к радиоактивно-загрязненным водотокам) возможен выпас овец без контроля содержания трансурановых элементов  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$ .

#### **Выводы**

- Установлено, что шерстная ткань является основной тканью, депонирующей  $^{239+240}\text{Pu}$ . Среди внутренних органов наибольшие концентрации отмечены для печени. Активности других органов относительно печени в 2–3 раза меньше.
- Показано, что в условиях длительного ежедневного поступления  $^{239+240}\text{Pu}$  в организм овец с различными компонентами окружающей среды, концентрация  $^{239+240}\text{Pu}$  в коже, шерсти, сердце, почках, легких, селезенке и мышечной ткани не увеличивается и процесс накопления не зависит от сроков поступления. Процесс накопления  $^{239+240}\text{Pu}$  наблюдается только для печени.
- Получены оценочные Кп из почвы в ткани и органы животных группы 2, которые на 1-2 порядка меньше средних Кп радионуклидов с кормом и водой, что необходимо учитывать при проведении оценки возможных концентраций радионуклидов в сельскохозяйственной продукции при ее получении на радиоактивно-загрязненной территории.
- Трансурановые радионуклиды, поступающие с почвой, усваиваются меньше, чем при поступлении с кормом.
- Установлена возможность контроля присутствия  $^{239+240}\text{Pu}$  в продукции овцеводства по их наличию в шерсти, исключая забой животных.
- Рассчитаны допустимое содержание  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в суточном рационе овец, допустимая удельная активность этих радионуклидов в растениях и почве потенциальных участков выпаса. Полученные значения показывают возможность выпаса овец на территориях, прилегающих к площадке "Дегелен" без контроля содержания  $^{239+240}\text{Pu}$  и  $^{241}\text{Am}$  в продукции овцеводства.

УДК 577.4:504.064:546.02.11

### **ТРИТИЙ КАК ИНДИКАТОР МЕСТ ПРОВЕДЕНИЯ ЯДЕРНЫХ ИСПЫТНИЙ**

Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В., Субботин С.Б.  
*Институт Радиационной Безопасности и Экологии, Курчатов, Казахстан*

#### **ВЕДЕНИЕ**

В настоящее время существует ряд различных направлений и методик, применяемых для индикации мест проведения ядерных взрывов - геологические, гидрогеологические, радиационные, в основу которых положены такие основные методы исследования как термометрия, тектоника, гамма-каротаж, исследование концентрации ряда благородных газов и т.д. В данной работе предлагается рассмотреть новый метод верификации мест проведения подземных ядерных взрывов – использование трития в качестве индикатора. Тритий как изотоп водорода эффективно включается в состав атмосферного воздуха и может быть зафиксирован в достаточно малых детектируемых количествах на уровне фоновых значений и обладает сравнительно большим периодом полураспада равным 12,4 года.

Детальные исследования содержания трития в местах осуществления ПЯВ были проведены на двух испытательных площадках – «Балапан» и «Дегелен».

#### **1. ИССЛЕДОВАНИЕ СОДЕРЖАНИЯ УРОВНЯ И ХАРАКТЕРА РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ В ВОЗДУШНОЙ СРЕДЕ В МЕСТАХ ПРОВЕДЕНИЯ ПЯВ НА ТЕРРИТОРИИ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»**

На площадке «Дегелен» подземные испытания проводились в горизонтальных горных выработках – штольнях. В общей сложности была сооружена 181 штольня с поперечным сечением от 9 кв. м. до 25 кв. м. и глубиной более километра.

*Методология проведения исследования.* Для проведения исследования в местах проведения ПЯВ на территории площадки Дегелен были определены следующие этапы:

- 1 Исследование уровня и характера распределения трития в воздушной среде внутри полости штольни;
- 2 Исследование уровня содержания трития в воздушной среде на приустьевых участках штолен;
- 3 Исследование уровня содержания трития в месте расположения вертикальных скважин;
- 4 Исследование уровня содержания трития в зоне максимального разрушения на ПЯВ.

##### **1.1 Исследование уровня и характера распределения трития в воздушной среде внутри полости штолен**

Результаты исследования представлены на рисунке (Рисунок ). По горизонтальной оси показано расстояние от портала каждой штольни до концевых боксов в долях от максимального. Точка «0» на графике соответствует portalу штольни.

Концентрация трития внутри полости штольни изменяется по экспоненциальной зависимости. Необходимо обратить внимание что, содержание трития на выходе из штольни составляет в ряде случаев десятки Бк/м<sup>3</sup>.

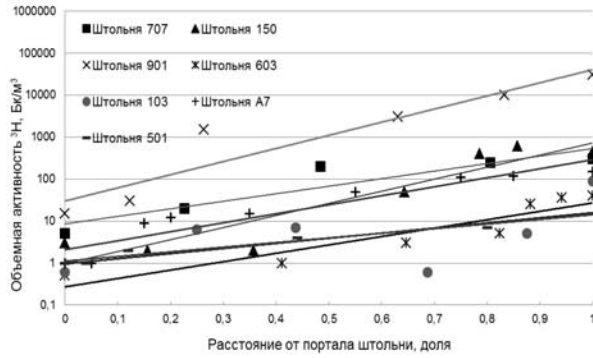


Рисунок 1. Характер распределения трития с воздушными потоками внутри полости штольни

**1.2 Исследование уровня содержания трития в воздушной среде на приустьевых участках штолен**  
 Результаты исследования представлены на рисунке (Рисунок 2).



Рисунок 2. Содержание трития в атмосфере на приустьевых участках штолен

Значения содержания трития изменяются в пределах от 0,2 до 3,3 Бк/м<sup>3</sup>, что превышает фоновый уровень площадки Дегелен.

**1.3 Исследование уровня содержания трития в месте расположения вертикальных скважин**  
 Результаты исследования представлены на следующем рисунке (Рисунок 3).

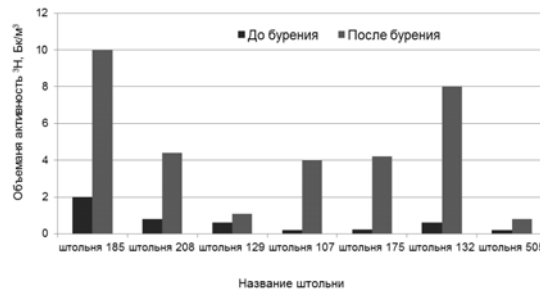


Рисунок 3. Содержание трития в месте расположения вертикальных геологических скважин

Значительные количества трития в воздухе до сих пор наблюдаются в полости штолен. Тритий, обладая высокой миграционной способностью, выходит на дневную поверхность с воздушными потоками, через различные разуплотнения горной породы.

**1.4 Исследование уровня содержания трития в зоне максимального разрушения горной породы на ПЯВ**  
 Результаты исследования представлены на рисунке (Рисунок 4).

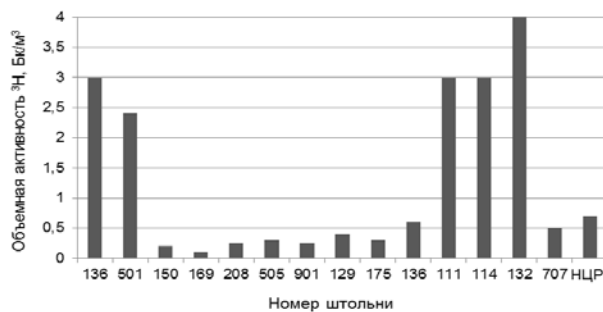


Рисунок 4. Содержание трития в атмосферном воздухе в зоне максимального разрушения горной породы над ПЯВ



Анализ результатов показал наличие трития в атмосферном воздухе исследуемой территории. Полученные значения не могут быть сформированы только фоновыми характеристиками, так как содержание трития в ряде случаев составляет десятки Бк/м<sup>3</sup>, при фоновом содержании трития на площадке «Дегелен» порядка 0,2 Бк/м<sup>3</sup> [10].

Результаты проведенного исследования наглядно показали, что в настоящий момент активно идет процесс эманации трития из мест проведения ПЯВ. Спустя более 20 лет после проведения последнего ядерного испытания на площадке «Дегелен», мы можем фиксировать тритий на различных участках в местах проведения ПЯВ.

## 2. ИССЛЕДОВАНИЕ СОДЕРЖАНИЯ УРОВНЯ И ХАРАКТЕРА РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ В ВОЗДУШНОЙ СРЕДЕ В МЕСТАХ ПРОВЕДЕНИЯ ПЯВ НА ТЕРРИТОРИИ ПЛОЩАДКИ «БАЛАПАН»

Ядерные испытания на площадке «Балапан» проводились в скважинах, имеющих обсадку трубами различного диаметра, глубиной от 125 до 600 м.

**Методология проведения исследования.** В процессе проведения работы выполнено исследование уровня содержания трития в воздушной среде на территории 8 скважин, и на приустьевых участках 3 из них проведено детально исследование уровня и характера распределения трития в воздушной среде. Схема расположения точек исследования на приустьевых площадках скважин представлена на рисунке (Рисунок 5).

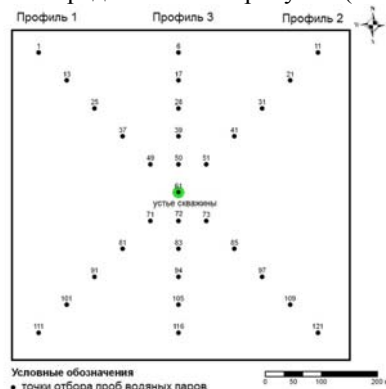


Рисунок 5. Схема расположения точек отбора проб водяных паров на приустьевых участках скважин

### 2.1 Исследование уровня содержания трития в месте расположения скважин

Результаты проведения данного этапа работы отображены на рисунке (Рисунок 6).

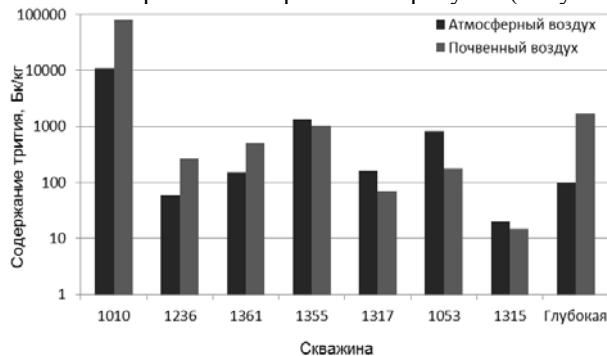


Рисунок 6. Содержание трития в водяных парах атмосферного и почвенного воздуха на приустьевых участках скважин

Концентрация трития в водяных парах почвенного воздуха изменяется в пределах от 20 до 80000 Бк/кг.

### 2.2 Изучение уровня и характера распределения трития в воздушной среде на приустьевых участках скважин

Наиболее масштабный характер распределение трития зафиксирован на приустьевом участке скважины 1355 (Рисунок 7). Содержание трития в воздушной среде на приустьевых участках скважин 1010 и Глубокая изменятся в пределах от 0,03 до 20 Бк/м<sup>3</sup>.

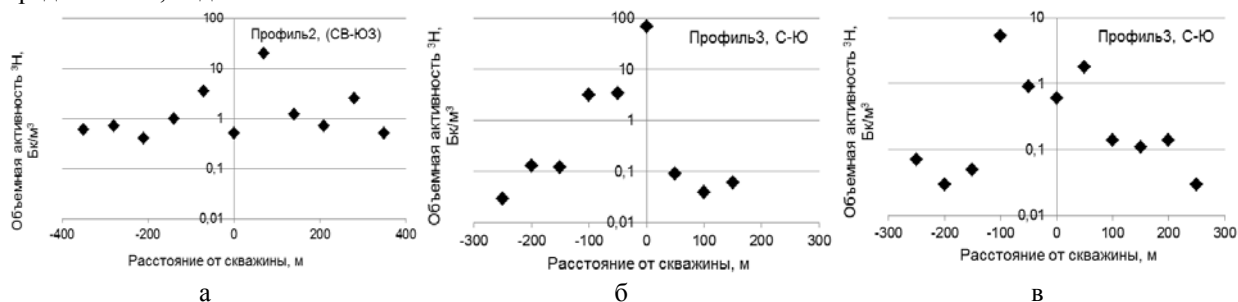


Рисунок 7. Характер распределения <sup>3</sup>H на приустьевом участке скважин относительно их устья 1355 (а), 1010 (б) и Глубокая (в)

Результаты исследования показали, что на приустьевых площадках всех исследуемых скважин идет процесс эманации трития с поверхности почвы в атмосферу.

Не всегда максимальные концентрации трития в воздухе территориально приурочены к месторасположению оголовка скважины. В ряде случаев, значимые концентрации трития в почвенном воздухе были зафиксированы на значительном расстоянии от скважины, составляющим от 50 до 200 м.

## **ВЫВОДЫ**

Спустя более 20 лет, мы можем фиксировать тритий в воздушной среде в месте проведения испытаний, как на близлежащей территории, так и на отдаленных участках. Полученные данные с одной стороны говорят о необходимости контроля содержания трития в местах проведения ПЯВ и в настоящий момент, а с другой стороны, показывают нам принципиальную возможность применения и использования данных об уровне содержания трития в воздушной среде для верификации мест проведения ядерных испытаний.

## **ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ НЕКОТОРЫХ УЧАСТКОВ ТЕРРИТОРИИ СИП**

Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М., Лукашенко С.Н., Магашева Р.Ю.  
*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

## **ВВЕДЕНИЕ**

Почва является первичным звеном миграции радионуклидов по пищевым цепям, что определяет необходимость детального исследования количественных характеристик, определяющих подвижность радионуклидов в почвах и системе почва-растение.

Данная работа посвящена обобщению результатов исследования параметров биологической подвижности радионуклидов  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$  в почвах различных участков территории СИП – в почвах луговых экосистем, подверженных влиянию радиоактивно-загрязненных водотоков штолен, в почвах степных экосистем, подвергшихся наземному радиоактивному загрязнению разного типа, и в почвах с "фоновыми" содержаниями радионуклидов.

Полученные данные позволяют выявить особенности поведения техногенных радионуклидов в почвах различных участков территории СИП. Результаты исследования форм нахождения техногенных радионуклидов в почве могут в дальнейшем послужить основой при разработке практических рекомендаций по ремедиации, улучшению радиозэкологического состояния земель СИП и прогнозировании уровня содержания радионуклидов в растениях, произрастающих на различных территориях СИП.

## **1. МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ**

### **1.1. Объекты исследований**

Результаты, представленные в данной работе, были получены в ходе многолетних исследований (2008–2011 гг.) форм нахождения радионуклидов в почвах различных экосистем территории СИП. Исследуемые участки были объединены в три группы, в зависимости от характера и уровня радиоактивного загрязнения, почвенно-климатических условий.

#### **Участок I. Площадка "Дегелен"**

Исследуемыми участками испытательной площадки "Дегелен" были выбраны экосистемы в районе припортовых площадок штолен № 176 и № 177, характеризующихся постоянным водотоком [1–4, 6–9]. Установлено, что наиболее значительными источниками загрязнения данных площадок в настоящее время являются водотоки из штолен.

#### **Участок II. Площадка "Опытное поле"**

На данной площадке проводились наземные, воздушные и высотные ядерные взрывы, в т.ч. и модельные эксперименты. В результате испытаний произошло загрязнение больших территорий как на полигоне, так и за его пределами. Исследуемые участки на площадке "Опытное поле" привязаны к местам проведения ядерных взрывов – техническим площадкам П-1, П-2, П-3, П-5 и П-7 [3].

#### **Участок III. Фоновые участки – "северные" и "западные" территории СИП**

Изучение форм нахождения радионуклидов в степных почвах "северных" и "западных" участков территории СИП проводилось в рамках комплексных радиозэкологических исследований [10, 11]. В результате исследований был сделан вывод о возможности использования этих территорий без каких-либо ограничений. На основании принятых рекомендаций данные участки территории СИП были определены как "фоновые".

### **1.2. Отбор проб**

Отбор проб почв на всех исследуемых участках проводился в местах с наиболее высокими уровнями радиоактивного загрязнения. Точки отбора проб почвы были привязаны к точкам отбора проб растений, отбираемых для определения коэффициентов накопления радионуклидов растениями.

### **1.3. Определение форм нахождения радионуклидов**

Изучение форм нахождения радионуклидов в данной работе проводилось с использованием метода последовательного экстрагирования. Время контакта почвы с выщелачивающим раствором на всех этапах эксперимента составляло  $12 \pm 2$  часов.

Содержание  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{241}\text{Am}$  в образцах почвы и вытяжках определяли с использованием стандартных методик [12 – 16].

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ.

### 2.1. Формы нахождения радионуклидов в почвах СИП

Проведен сравнительный анализ параметров биологической доступности радионуклидов в почвах исследованных участков. Обобщающие данные представлены в таблицах 1–4.

Таблица 1.

Содержание форм нахождения радионуклида  $^{137}\text{Cs}$  в почвах всех исследуемых участков,  
% от суммарного содержания

Объект	Формы нахождения					
	водораст- воримая	обмен- ная	органи- ческая	подвиж- ная	фиксиро- ванная	прочность- связанная
шт. № 176 (n=36)	< 0,5	6,8	-	4,5	26,0	62,2
шт. № 177 (n=12)	<0,2	<0,4	1,2	4,0	3,4	90,8
"опытное поле" (n=24)	< 0,4	< 0,7	< 0,4	< 0,6	97,9	
"север" (n=10)	< 18,0		-	<13,0	68,0	
"запад" (n=8)	<16,4		-	<13,9	69,7	

Таблица 2.

Содержание форм нахождения радионуклида  $^{241}\text{Am}$  в почвах всех исследуемых участков,  
% от суммарного содержания

Объект	Формы нахождения					
	водораст- воримая	обмен- ная	органи- ческая	подвиж- ная	фиксиро- ванная	прочность- связанная
шт. № 176 (n=36)	-	-	-	-	-	-
шт. № 177 (n=12)	3,0		2,0	76,0	19,0	
"Опытное поле" (n=23)	< 1,0	< 1,1	< 1,4	12,1	84,4	
"север" (n=10)	< 17,6		-	58,2	< 24,2	
"запад" (n=8)	≤ 30,8		-	≤ 57,7	≤ 11,5	

Таблица 3.

Содержание форм нахождения радионуклида  $^{90}\text{Sr}$  в почвах всех исследуемых участков, % от суммарного содержания

Объект	Формы нахождения					
	водораст- воримая	обмен- ная	органи- ческая	подвиж- ная	фиксиро- ванная	прочность- связанная
шт. № 176 (n=36)	1,1	53,4	-	35,2	6,4	3,9
шт. № 177 (n=12)	53,00		1,8	33,1	8,2	3,9
"Опытное поле" (n=29)	□ 0,06	□ 1,7	□ 0,05	2,8	95,4	
"север" (n=10)	77,1		-	≤ 20,0	≤ 2,9	
"запад" (n=8)	48,8		-	38,9	12,3	

Таблица 4.

Содержание форм нахождения радионуклида  $^{239+240}\text{Pu}$  в почвах всех исследуемых участков,  
% от суммарного содержания

Объект	Формы нахождения					
	водорастворимая	обменная	органическая	подвижная	фиксированная	прочностьсвязанная
шт. № 176 (n=36)	-	-	-	-	-	-
шт. № 177 (n=12)	1,0		4,0	2,0	93,0	
"Опытное поле" (n=9)	< 0,01	< 0,01	0,3	1,0	98,7	
"север" (n=10)	< 1,3		-	≤ 3,8	94,9	
"запад" (n=8)	≤ 3,0		-	≤ 2,6	94,3	

Сравнительный анализ комплексных данных позволил выявить особенности поведения радионуклидов в почвах различных участков территории СИП. Для площадки "Опытное поле" получены результаты, позволяющие сделать вывод о том, что изученные радионуклиды  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{241}\text{Am}$  и  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  в почвах данной территории находятся в относительно стабильных формах, обуславливающих их низкую миграционную способность. Для площадки "Дегелен" характерна несколько иная картина. В луговых почвах с более высоким уровнем увлажнения, характерными рельефными и почвенными условиями, радионуклиды характеризуются наиболее выраженными миграционными свойствами. В наибольшей степени миграционноспособным в почвах площадки "Дегелен" является радионуклид  $^{90}\text{Sr}$ , в среднем, более половины содержания данного радионуклида находится в обменной форме. Менее подвижны в луговых почвах радионуклиды  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Поведение радионуклидов в почвах "фоновых" участков территории СИП занимает промежуточное положение между поведением их в почвах площадок "Опытное поле" и "Дегелен". Исключением является радионуклид  $^{90}\text{Sr}$ , характеризующийся в почвах "северных" территорий наибольшей подвижностью, в среднем, 77 % от суммарного содержания всех форм приходится на долю легкодоступных форм.

Следует отметить отличительную особенность радионуклида  $^{239+240}\text{Pu}$  как наиболее устойчивого в почвах радионуклида. Содержание недоступных растениям форм данного радионуклида, как в луговых почвах с высоким режимом увлажнения, так и в почвах степных экосистем "фоновых" территорий и площадки "Опытное поле", составляет не менее 93 %. Радионуклид  $^{137}\text{Cs}$  в почвах исследованных участков СИП преобладает в прочносвязанной форме. Радионуклид  $^{90}\text{Sr}$ , напротив, обладает наибольшими миграционными свойствами, исключением являются почвы площадки "Опытное поле". Радионуклид  $^{241}\text{Am}$  менее подвижен, в основном, преобладающими в почвах являются подвижные формы радионуклида за исключением почв площадки "Опытное поле".

#### **ЗАКЛЮЧЕНИЕ**

- Первоочередное влияние на содержание форм нахождения радионуклидов оказывает форма радионуклида, в которой он был привнесен в исследуемые почвы (поступление с водотоком, вследствие наземных взрывов, глобальные выпадения, следы от взрывов и т.д.).
- Наименьшая миграционная способность всех радионуклидов отмечается в грунтах площадки "Опытное поле", обусловленная влиянием проведенных на данной площадке взрывов.
- Наибольшая миграционная способность радионуклидов отмечается в почвах припортовых площадок штолен горного массива Дегелен с высоким промывным режимом и постоянным выносом радионуклидов на дневную поверхность.
- Целесообразно проведение дополнительных исследований содержания форм нахождения радионуклидов в почвах с «фоновыми» уровнями с использованием более чувствительных методик.
- Накопленный материал, позволяет делать оценочные прогнозы о поведении изученных радионуклидов в почвах других участков территории СИП, схожих по условиям с исследованными участками.

УДК 577.4:504.064:539.16

#### **ХАРАКТЕР И УРОВНИ РАДИОНУКЛИДНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПЛОЩАДКИ «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ» СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА**

Мошков А.С.<sup>1</sup>, Лукашенко С.Н.<sup>1</sup>, Яковенко Ю.Ю.<sup>1</sup>, Стрильчук Ю.Г.<sup>1</sup>,  
Коровина О.Ю.<sup>1</sup>, Каширский В.В.<sup>1</sup>, Шатров А.Н.<sup>1</sup>, Яковенко А.М.<sup>2</sup>

<sup>1</sup>*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

<sup>2</sup>*Институт геофизических исследований НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

Опытное поле являлось первой испытательной площадкой в СССР для проведения воздушных и наземных испытаний ядерного оружия. Масштабных исследований данной территории после окончания испытаний не проводилось. Результаты аэрогамма-съемки показали, что Опытное поле имеет существенное загрязнение по  $^{137}\text{Cs}$ . Но данный метод позволяет лишь грубо оценить общий характер загрязнения. В рамках проектов К-337 и К-54 Международного научно-технического центра (МНТЦ) были описаны загрязненные участки, находящиеся на технических площадках П-2, П2-Г и П-7. Результаты этой работы были использованы нами в дальнейшем.

Согласно официальным данным в период с 1949 по 1962 год на территории Опытного поля было проведено 30 наземных и 86 воздушных ядерных испытаний. Поскольку воздушные взрывы приводят, в основном, к загрязнению стратосферы и появлению дальних радиоактивных выпадений, то далее мы их не рассматривали. Из 30 наземных испытаний известно, что 5 устройств не сработало. Это могло привести к существенному загрязнению территории делящимися материалами. Испытания проводились на 6 технических площадках: П-1, П-2, П-3, П-5, П-7 и П2-Г. Каждая из площадок представляет собой участок радиусом около 2 км без специального ограждения. Помимо ядерных испытаний, на территории П-2, П2-Г и П-7 было проведено 40 гидроядерных и 5 гидродинамических экспериментов, в результате чего было диспергировано в окружающую среду около 2000 Ки альфа-активности плутония.

Анализируя имеющиеся данные о направлении среднего ветра во время испытаний, были определены направления большей части следов радиоактивных выпадений от наземных ядерных, гидроядерных и

гидродинамических испытаний. Полученные данные позволяют предположить, что на юге и юго-востоке Опытного поля существует высокая плотность загрязнения.

Радиоактивное загрязнение площадки может включать следующие группы искусственных радионуклидов:

- Осколки деления:  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{151}\text{Sm}$  и  $^{99}\text{Tc}$ ;
- Остатки делящегося вещества  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ , и  $^{241}\text{Am}$ ;
- Также территория ОПП может быть загрязнена продуктами активации ядер окружающей среды мгновенными нейтронами  $^{152,154,155}\text{Eu}$  и  $^{60}\text{Co}$ . Вероятно, они сконцентрированы непосредственно в эпицентрах испытаний.

Целью данной работы было исследование характера и уровня загрязнения территории испытательной площадки «Опытное поле», которое включало:

- Оценку общего состояния «Опытного поля»;
- Выявление механизмов и закономерностей формирования радиационной обстановки;
- Определение характера и уровней радионуклидного загрязнения на некоторых характерных участках.

**Выяснение радиационной обстановки на площадке «Опытное поле». Общее состояние площадки**

Для выявления объектов и определения степени техногенной нарушенности природного ландшафта были изучены космоснимки территории «Опытного поля».

С целью выяснения радиационной обстановки было проведено крупномасштабное обследование площадки «Опытное поле», которое включало в себя измерение интегральных радиационных параметров и отбор проб почвы в узловых точках сети 500\*500 метров. Пробы почвы проходили количественный анализ с использованием гамма- и бета-спектрометрического метода на содержание техногенных радионуклидов  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{152,154,155}\text{Eu}$  и  $^{241}\text{Am}$ .

Некоторые типичные радиоактивно-загрязненные участки были исследованы более подробно. На них изучено площадное и вертикальное распределение радионуклидов на глубину до 100 см. Приоритетными участками для исследования, прежде всего, являлись эпицентральные зоны.

По результатам исследования, уровень МЭД на Опытном поле варьирует от 0,10 до 16 мкЗв/ч. Отсутствует равномерное загрязнение, не исключено наличие чистых участков. Только небольшая ее часть может быть отнесена к радиационно-загрязненной территории. Учитывая, что уровень природного фона на площадке равен около 0,12 мкЗв/ч, а предел годовой дозы от облучения техногенными радионуклидами для населения составляет 1 мЗв/год, грубо оценим, что при мощности эквивалентной дозы 0,24 мкЗв/ч и выше необходимо ограничивать пребывание населения на данной территории. Площадь территории, где пребывание населения должно быть ограничено составляет около 16 км<sup>2</sup>.

По данным площадного распределения  $^{137}\text{Cs}$  и  $^{90}\text{Sr}$  можно выделить основные следы радиоактивных выпадений продуктов деления (рисунок 1). Загрязнение представляет собой три протяженных участка вытянутой формы распространяющихся в северо-восточном, юго-восточном и юго-западном направлениях. Данные следы сформированы, вероятно, в результате суперпозиции множества следов радиоактивных выпадений и имеют очень большую площадь. С уверенностью можно утверждать, что они выходят за административные границы испытательной площадки.

При оценке запасов РАО мы принимали, что основная часть загрязнения сосредоточена в верхнем 5-сантиметровом слое. Зная масштабы площадного загрязнения, оценили объемы РАО по  $^{137}\text{Cs}$  в 50000 м<sup>3</sup>.

В постановлении Кабинета Министров РК от 31 июня 2007 года «об утверждении критериев оценки экологической обстановки территорий» были установлены показатели для оценки состояния почв. Согласно этому документу площадь территории экологического бедствия на Опытном поле по данному радионуклиду составляет 1 км<sup>2</sup>.

Продукты нейтронной активации  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152,154}\text{Eu}$ , в основном, сосредоточены непосредственно в эпицентрах проведенных экспериментов (рисунок 2). Но следует заметить, что значительные концентрации  $^{152}\text{Eu}$  были обнаружены вне площадок П-5, П-1, а также вблизи северо-западной границы пл. «Опытное поле». Их наличие, вероятно, связано с перемещением активированного грунта в процессе образования воронки с эпицентров испытаний в направлении движения воздушных потоков.

При построении карты-схемы площадного загрязнения  $^{241}\text{Am}$  использовались все имеющиеся данные по этой территории, включая результаты исследования по проекту МНТЦ К-337 (рисунок 3). В целом уровни и площадь загрязнения  $^{241}\text{Am}$ , гораздо более масштабны, чем загрязнение продуктами деления и активации. Данный вид загрязнения является доминирующим. Учитывая, что средний коэффициент отношения Pu/Am равен около 10, на основе карты были оценены запасы РАО, которые составляют около 2 млн. кубометров. Около 80 км<sup>2</sup> территории площадки могут быть отнесены к зоне экологического бедствия, и лишь 1/3 территории относится к зоне с относительно удовлетворительной экологической ситуацией.

Наличие высоких концентраций  $^{241}\text{Am}$  на границах Опытного поля свидетельствует о том, что значительная часть загрязнения выходит за его пределы.

Анализ характера распределения радионуклидов по профилям позволил выявить 2 типа участков загрязнения: «точечный» и площадной. «Точечные» можно разделить еще на 2 категории, где

- в одном случае наблюдаются высокие концентрации  $^{241}\text{Am}$ ;
- в другом случае наблюдаются высокие концентрации всех радионуклидов. Последние можно идентифицировать как эпицентры ядерных испытаний.

Площадные участки часто располагаются вне технических площадок и характеризуются высокими концентрациями  $^{241}\text{Am}$  и  $^{137}\text{Cs}$ . Представляют собой следы радиоактивных выпадений.

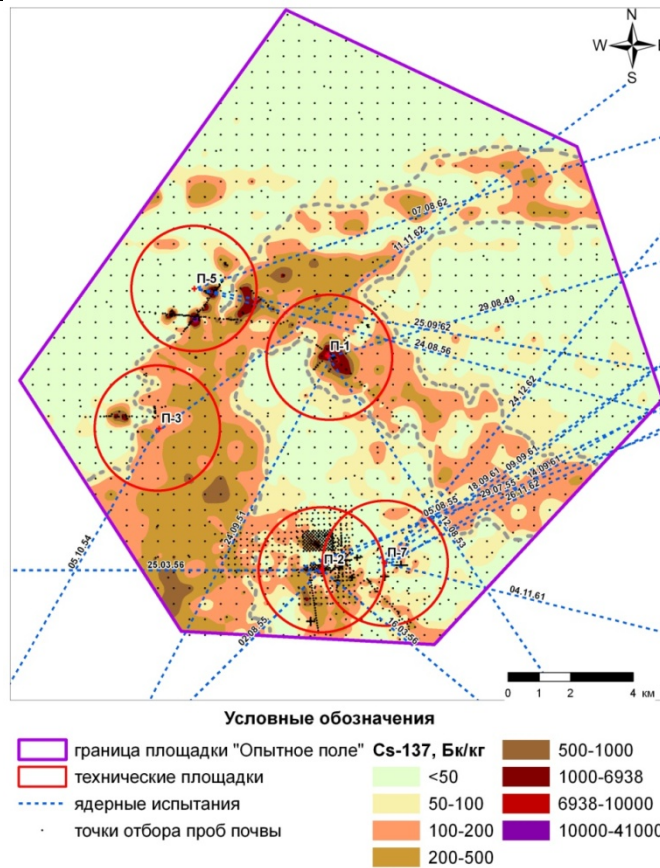


Рисунок 1 - Карта-схема распределения  $^{137}\text{Cs}$  на территории площадки Опытное поле

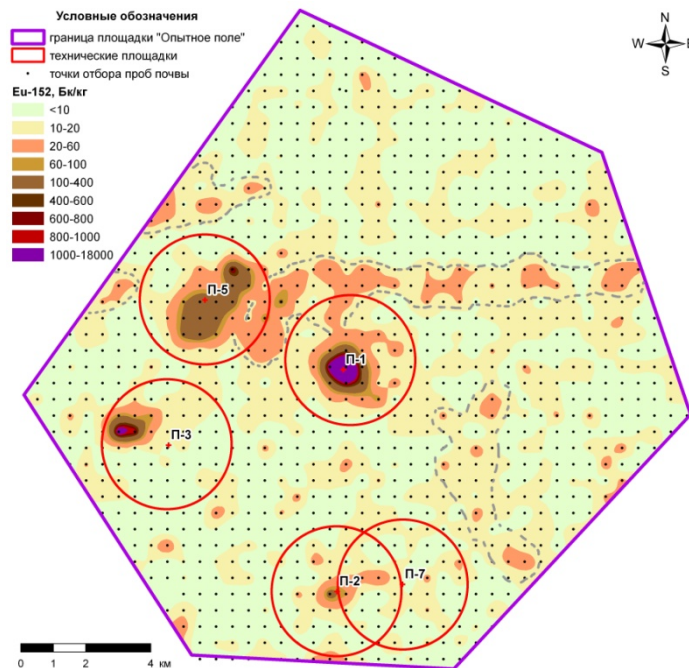


Рисунок 2 - Карта-схема распределения  $^{152}\text{Eu}$  на территории площадки Опытное поле



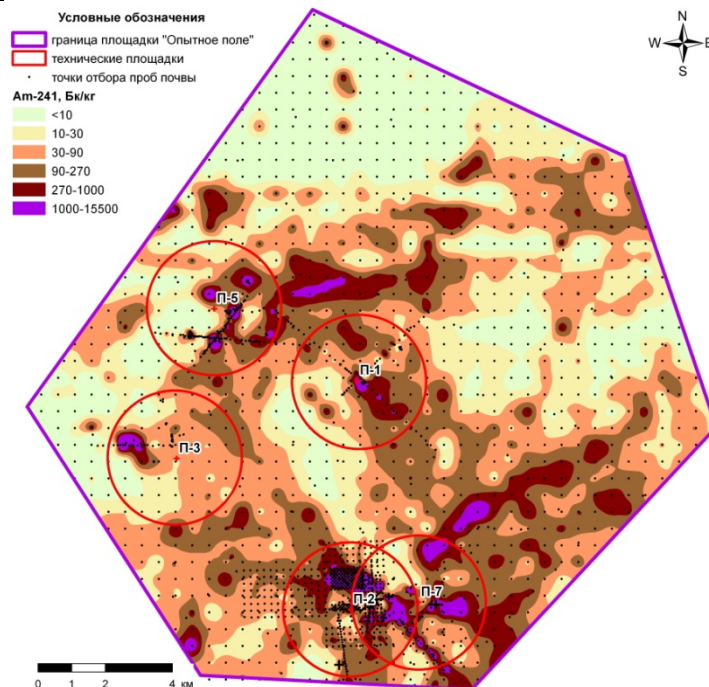


Рисунок 3 - Карта-схема распределения  $^{241}\text{Am}$  на территории площадки Опытное поле

**Выяснение радиационной обстановки на технических площадках П-1, П-2, П-2-Г, П-3, П-5 и П-7**

Рассмотрим технические площадки ОПП. Площадка П-1 располагается в центре «Опытного поля». 29 августа 1949 года на ее территории произвели испытание первой советской ядерной бомбы, а 12 августа 1953 г. испытан первый термоядерный заряд мощностью 400 кт в тротиловом эквиваленте. На ее территории можно выделить один радиационно-загрязненный участок со значениями МЭД, достигающими величины 20 мкЗв/ч и выше (рисунок 4).

В центре участка располагается воронка небольшой глубины. Площадь загрязнения с уровнем МЭД более 0,24 мкЗв/ч, где пребывание населения должно быть ограничено, составляет около 6 км<sup>2</sup>. Визуально по карте можно наблюдать участки вытянутой формы, характеризующие изменение радиационного фона, шириной до 100 метров. Предположительно, данный факт связан с проведенной рекультивацией в эпицентральной зоне после первых испытаний до термоядерного эксперимента.

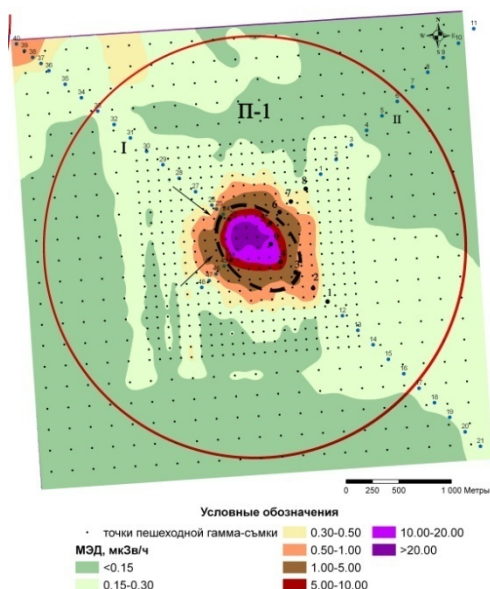


Рисунок 4 – Карта распределения МЭД на технической площадке П-1

Исследование радиального распределения техногенных радионуклидов относительно эпицентра позволило выделить на профиле №1 три участка (рисунок 5). Участок от 0 до 2000 метров, вероятно, связан с выпадениями радиоактивных осадков от испытаний на других площадках. Участок от 2000 до 3200 метров характеризуется низкими концентрациями техногенных радионуклидов. Это может быть объяснено как отсутствием выпадением на данном участке, так и возможной проведенной ранее рекультивацией, что косвенно подтверждается характером распределения  $^{241}\text{Am}$  в профиле №2. Максимум концентрации техногенных радионуклидов зафиксирован на



расстоянии от 3200 до 4600 метров и может быть приурочен непосредственно к эпицентру проведенных испытаний. Максимумы  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  и  $^{241}\text{Am}$  смещены относительно максимума концентрации  $^{152}\text{Eu}$  в направлении около 130 градусов, что совпадает с направлением ветра во время проведения термоядерного эксперимента. Запасы РАО на площадке оценены в 250 тысяч  $\text{м}^3$ .

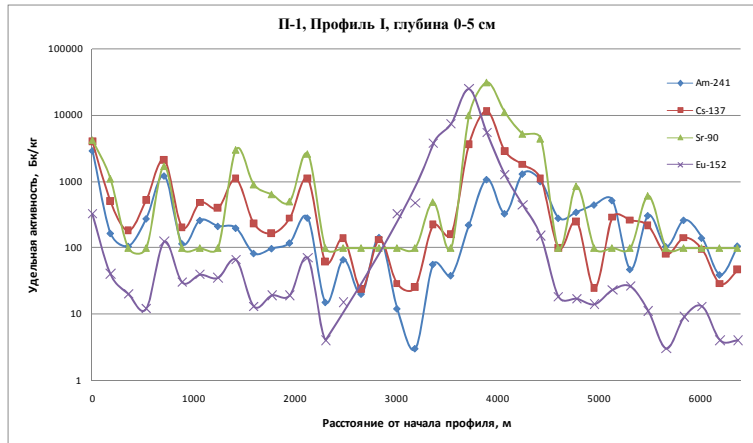


Рисунок 5 - Распределение удельной активности техногенных радионуклидов на профиле П-1(I)

Испытательная площадка П-3 была предназначена для воздушных взрывов малой и средней мощности; площадка П-5 – для воздушных взрывов большой мощности. Помимо воздушных испытаний, на территории этих площадок было произведено 7 наземных ядерных взрывов: 4 испытания на П-3 и 3 испытания на П-5. По результатам пешеходной гамма-съемки была построена карта распределения МЭД.

Площадка П-5 характеризуется высоким уровнем МЭД со значениями, достигающими 20 мкЗв/ч и выше для всех трех участков (рисунок 6).

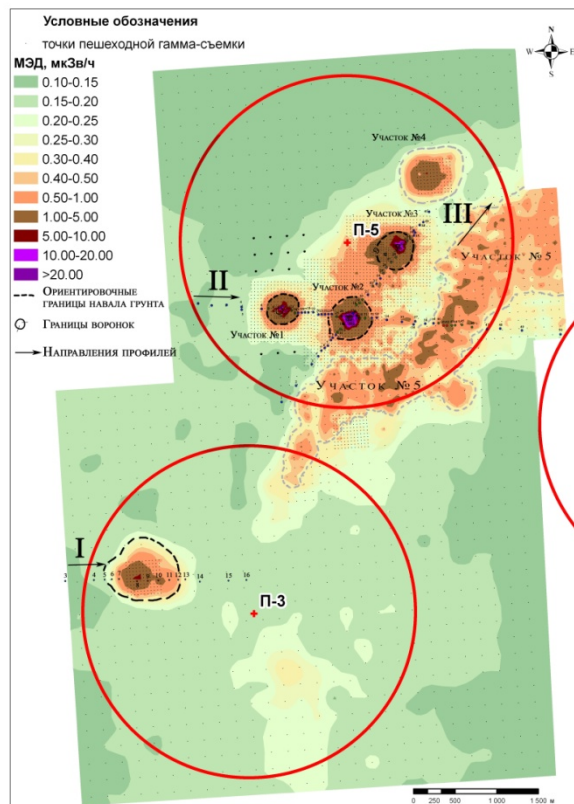


Рисунок 6 – Карта распределения МЭД на технических площадках П-3 и П-5

Площадь загрязнения составляет около  $6 \text{ км}^2$ . Эпицентральные зоны представляют собой три воронки, окруженные радиоактивно-загрязненной территорией. Помимо трех воронок, обнаружены 2 участка локального радиоактивного загрязнения – участок №4 №5. Диаметр участка №4 около 800 м, по размерам и форме он похож на еще один эпицентр ядерного испытания, данные о котором отсутствуют в официальных источниках. Для подтверждения или опровержения данного предположения, необходимо провести дополнительное обследование. Но уже известно, что на участке наблюдаются высокие концентрации продуктов нейтронной активации. Участок №5, предположительно относится к следу радиоактивных выпадений от испытания на площадке П-3.

Техническая площадка П-3 имеет более низкий уровень МЭД со значениями, варьирующими от 0,10 до 10 мкЗв/ч. Эпицентральная зона представляет собой радиационно-загрязненный участок без выраженных изменений окружающего ландшафта. Площадь загрязнения составляет около 0,6 км<sup>2</sup>

Исследование радиального распределения техногенных радионуклидов на площадке П-3 относительно эпицентра позволило определить основной загрязнитель – <sup>241</sup>Am. Максимумы загрязнения <sup>241</sup>Am смещены влево и вправо относительно максимума загрязнения продуктами нейтронной активации – эпицентра взрыва. Активность <sup>241</sup>Am в эпицентре снижается на порядки. Плавные спадающие концентрации европия по мере удаления от центра взрыва свидетельствуют о большом телесном угле падения быстрых нейтронов. Запасы РАО оцениваются в 100 тысяч кубометров.

На участках №1, 2 и 3 площадки П-5, радиоактивное загрязнение грунта обусловлено наличием высоких концентраций <sup>137</sup>Cs, <sup>241</sup>Am и <sup>90</sup>Sr. Всем эпицентрам соответствуют высокие концентрации продуктов нейтронной активации, величина которых резко снижается в местах выброса грунта и по мере удаления от воронки.

Вертикальное распределение радионуклидов можно описать экспоненциальной функцией. Но существуют такие участки, в которых характер распределения концентрации не подчиняется этому закону. Она либо повышается до определенной глубины, либо остается неизменной, а затем снижается по экспоненциальному закону. Это может быть объяснено существованием так называемой "зоны навала", когда при ядерном взрыве грунт покрывал поверхность земли и образовывал дополнительный слой различной высоты. На рисунке изображен срез земли, сделанный в непосредственной близости от эпицентра. На данном участке навал толщиной около 20 см хорошо определяется визуально. Существование данных участков необходимо учитывать при подсчете РАО. Их объем на площадке П-5 оценен в 150 тысяч кубометров.

Испытательная площадка П-2 была предназначена для наземных ядерных взрывов мощностью от 1 до 14 кт. На ней было произведено 6 ядерных испытаний, При этом первое устройство не сработало. На площадке П-7 проводили испытания малой мощности от 7 до 400 т на нулевой высоте. На ней произведено 12 испытаний, в 4 случаях ядерное устройство не сработало. Помимо ядерных на территории данных площадок было произведено 40 гидроядерных и 5 гидродинамических взрывов.

Судя по интегральным радиационным параметрам, на этих площадках располагаются около 11 радиационно-загрязненных участков с высоким уровнем МЭД. Площадь загрязнения составляет около 4,3 км<sup>2</sup>. По карте распределения МЭД в данном случае достаточно сложно оценить масштабы загрязнения, учитывая специфику проведенных экспериментов. Более информативными являются результаты гамма-спектрометрии. При построении карт-схем площадного распределения <sup>137</sup>Cs и <sup>241</sup>Am на территории технических площадок П-2, П2-Г и П-7 были наложены все имеющиеся данные, в том числе, полученные в рамках проекта К-337 международного научно-технического центра. Можно утверждать, что доминирующим видом радионуклидного загрязнения их территории является <sup>241</sup>Am и, следовательно, <sup>239+240</sup>Pu. Учитывая, что средний коэффициент отношения Pu/Am равен 10, было оценено, что суммарные запасы РАО составляют, по меньшей мере, 500 тысяч кубометров.

Оценивая весь комплекс полученных результатов, можно дать общую оценку характера и механизмов загрязнения «Опытного поля».

По интегральным радиационным параметрам только небольшая часть «Опытного поля» может быть отнесена к радиационно-загрязненной территории. Площадь с уровнем МЭД выше 0,24 мкЗв/ч составляет около 11 км<sup>2</sup>, то есть 3% от всей территории «Опытного поля». После обследования технических площадок цифра уточнена до 16 км<sup>2</sup>.

Выявлены несколько участков, которые могут быть идентифицированы как «эпицентры» ядерных взрывов.

Продукты деления <sup>137</sup>Cs и <sup>90</sup>Sr распространены по трем основным направлениям: северо-восточном, юго-восточном и юго-западном. Наибольшая концентрация этих радионуклидов встречается непосредственно на участках эпицентров ядерных взрывов, которые занимают относительно малые площади до первых единиц квадратных километров. На остальной территории «Опытного поля» их концентрация находится на относительно невысоком уровне до  $n \times 10^3$  Бк/кг. <sup>241</sup>Am и <sup>239+240</sup>Pu в значительной мере присутствуют в эпицентральных зонах всех технических площадок, а также в виде протяженных следов радиоактивных выпадений. Данный вид загрязнения является доминирующим на всей территории Опытного поля. Помимо делящихся веществ и продуктов деления, в эпицентрах сконцентрированы продукты нейтронной активации: Со<sup>60</sup>, Eu<sup>152, 154, 155</sup>, которые, в основном, не выходят за пределы технических площадок и могут служить индикаторами ядерных испытаний.

Совокупные объемы РАО на всех технических площадках составляет около 1млн м<sup>3</sup>, при этом еще 1 млн. м<sup>3</sup> находится вне технических площадок. Учитывая объемы РАО, а также степень радиационной опасности с точки зрения внешнего облучения, можно сделать вывод о нецелесообразности проведения рекультивационных мероприятий. Следует учесть, что участки загрязнения выходят за существующие границы «Опытного поля», поэтому одним из приоритетных направлений работ на СИП должно быть уточнение границ этих участков. Учитывая высокую радиотоксичность трансурановых элементов, а также их высокие концентрации и обширность загрязненных площадей, необходимо осуществить мероприятия по физическому ограничению доступа населения на эти территории. Нынешние границы «Опытного поля» должны быть пересмотрены, так чтобы его новые границы соответствовали его текущему радиоэкологическому статусу.

## NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF Ca, Cl, Mg, Na, and P CONTENTS IN THE HUMAN RETICULOENDOTHELIAL SARCOMA

Sofia ZAICHICK and Vladimir ZAICHICK\*

Northwestern University, Chicago, IL, 60611, USA

\*Medical Radiological Research Center, 249020 Obninsk, Kaluga Region, Russia

**Introduction**

Bone tumors are a heterogeneous group of tumors that all arise from bone tissue, which consists of cartilaginous, osteoid and fibrous tissue, and bone marrow elements. Each tissue can give rise to benign or malignant tumors. The differentiation of benign and malignant intraosseous lesions can often be accomplished by means of conventional roentgenology, CT, and MRI. All of these methods of introscopy are very important, particularly for the assessment of tumor location, form, size, and infiltration of the adjacent tissue. However, the radiographic appearance of many lesions is indeterminate, and final diagnosis must be achieved using biopsy and histopathologic evaluation.

It is well known that tissues of human body differ greatly in their contents of chemical elements. Thus, it can be expected that bone tumors of a different origin would have specific elemental composition. In vivo neutron activation analysis (*in vivo* NAA) allows determination of some chemical element contents (Ca, Cl, and Na) in tumor tissue and has a potential to become a useful tool in oncology diagnostics.<sup>1,2</sup>

To our knowledge, no data are available about the chemical element contents of bone tumors with respect to different origin of disease. Therefore, we determined the Ca, Cl, Mg, Na, and P contents in the reticuloendothelial sarcoma and intact bone tissue using instrumental neutron-activation analysis with high resolution spectrometry of short-lived radionuclides (INAA-SLR).

**Materials and methods**

**Samples.** Samples of reticuloendothelial sarcoma tissue were obtained from 12 patients (2 females and 10 males from 4 to 24 years old). All patients were hospitalized at the Medical Radiological Research Centre. In all cases the diagnosis has been confirmed by clinical and morphological data. The tumor samples for NAA were received from biopsy and resected specimens. The control group consisted of 27 patients with intact bone (7 females and 20 males from 6 to 50 years old) who died from different deceases. The intact cortical bone samples of femur and tibia were collected at the Department of Pathology, Obninsk City Hospital. All bone samples were freeze dried until constant mass was obtained. Then samples were sealed separately in thin polyethylene films washed with acetone and rectified alcohol. The sealed samples were placed in labeled polyethylene ampoules.

To determine contents of the elements by comparison with a known standard, biological synthetic standards (BSS) prepared from phenol-formaldehyde resins were used.<sup>3</sup> Corrected certified values of BSS element contents were reported by us before.<sup>4</sup> In addition to BSS, aliquots of commercial, chemically pure compounds were also used as standards. Ten certified reference material CRM IAEA H-5 (Animal Bone) and standard reference material SRM NIST 1486 (Bone Meal) sub-samples weighing about 50–100 mg were analyzed in the same conditions as bone samples to estimate the precision and accuracy of results.

**Methods.** The contents of Ca, Cl, Mg, Na, and P were determined by INAA-SLR using a horizontal channel equipped with the pneumatic rabbit system of the WWR-c research nuclear reactor. The neutron flux in the channel was  $1.7 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Ampoules with bone samples, BSS, intralaboratory-made standards, CRM and SRM were put into polyethylene rabbits and then irradiated separately for 60 s. Copper foils were used to assess neutron flux. The measurement of each sample was made 1 min after irradiation. The duration of the measurements was 10 min. A coaxial 98 cm<sup>3</sup> Ge (Li) detector and a spectrometric unit (NUC 8100), including a PC-coupled multichannel analyzer, were used for measurements. The spectrometric unit provided 2.9 keV resolution at the <sup>60</sup>Co 1332 keV line. The information of used nuclear reactions, radionuclides, gamma-energies, and other details of the analysis including the quality control of results were reported by us before.<sup>5</sup>

**Statistics.** A dedicated computer program of NAA mode optimization was used.<sup>6</sup> Using standard programs, the summary of statistics, arithmetic mean, standard deviation, standard error of mean, minimum and maximum values, median, percentiles with 0.025 and 0.975 levels were calculated for different chemical element mass fractions. The reliability of difference in the results between intact bone and reticuloendothelial sarcoma tissue was evaluated by Student's t-test

**Results and discussion**

Table 1 represents certain statistical parameters (arithmetic mean, standard deviation, standard error of mean, minimal and maximal values, median, percentiles with 0.025 and 0.975 levels) of the Ca, Cl, Mg, Na, and P mass fractions in intact cortical bone samples and reticuloendothelial sarcoma tissue.

The information of the effect of cancerous transformation on the chemical element contents in bone tissue is presented in Table 2. From Tables 2, it is observed that in reticuloendothelial sarcoma tissue the mass fractions of Cl ( $p \leq 0,001$ ) and Na ( $p \leq 0,05$ ) are higher and the mass fraction of Ca is lower ( $p \leq 0,001$ ) than in normal tissues. Different directions of changes suggest potential of mass fraction ratios of these elements as reticuloendothelial sarcoma markers.

**Table 1.** Some statistical parameters of Ca, Cl, Mg, Na, and P mass fractions in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue (g·kg<sup>-1</sup>, dry weight basis)

Tissue	Element	M	SD	SEM	Min	Max	Med	P0.025	P0.975
Intact cortical bone n=27	Ca	222	43.6	9.3	166	369	212	174	317
	Cl	1.52	1.42	0.30	0.40	6.80	1.10	0.455	5.04
	Mg	2.94	0.79	0.17	0.90	5.04	3.00	1.51	4.36

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

	Na	6.40	1.74	0.36	3.80	11.7	6.00	4.41	10.9
	P	112	29.5	6.1	66.0	174	107	66.1	168
R-E sarcoma n=12	Ca	81.4	23.7	8.4	51.0	123	74.0	53.5	119
	Cl	12.9	3.4	1.4	8.1	17.8	12.9	8.4	17.5
	Mg	2.34	0.84	0.37	1.40	3.40	2.10	1.44	3.36
	Na	10.4	4.5	1.6	4.30	19.8	9.09	5.07	18.7
	P	84.8	31.2	11.0	45.0	138	79.5	47.6	135

R-E sarcoma - reticuloendothelial sarcoma; M - arithmetic mean; SD – standard deviation; SEM – standard error of mean; Min – minimum value; Max – maximum value; Per. 0.025 – percentile with 0.025 level; Per. 0.975 – percentile with 0.975 level

**Table 2.** Comparison between mean values (M±SEM) of Ca, Cl, Mg, Na, and P mass fraction in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue (g·kg<sup>-1</sup>, dry weight basis)

Element	Intact cortical bone (I) n=27	Reticuloendothelial sarcoma (II) n=12	Ratio II to I <i>p</i> (Student's <i>t</i> -test)
Ca	222±9	81.4±8.4	0.37 <sup>c</sup>
Cl	1.52±0.30	12.9±1.4	8.49 <sup>c</sup>
Mg	2.45±0.37	2.34±0.37	0.96
Na	6.40±0.36	10.4±1.6	1.63 <sup>a</sup>
P	112±6	84.8±11.0	1.04

M - mean, SEM – standard error of mean, n – number of samples, <sup>a</sup> – *p* ≤ 0,05, <sup>c</sup> – *p* ≤ 0,001

Table 3 represents certain statistical parameters (arithmetic mean, standard deviation, standard error of mean, minimal and maximal values, median, percentiles with 0.025 and 0.975 levels) of the Ca/P, Ca/Mg, Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na mass fraction ratios in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue.

Table 4 depicts data of comparison between mean values (M±SEM) of Ca/P, Ca/Mg, Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na mass fraction ratios in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue. It was shown that higher Cl/Ca and Cl/Na mass fraction ratios as well as lower Ca/P, Ca/Mg, and Ca/Na mass fraction ratios were typical of reticuloendothelial sarcoma tissue compared with intact bone.

Figs.1 shows the histograms of Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na ratios in all samples of intact bone (1) and reticuloendothelial sarcoma tissue (2). Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na ratios were chosen among others because it is possible to determine these ratios by *in vivo* NAA.<sup>1</sup> Using ratios of chemical elements mass fractions instead of the absolute values of mass fraction is better for making a specific diagnosis because of at least two reasons: 1) relations of elements do not depend on the moisture content (water) in the tissue; 2) defining relations of elements is more convenient for *in vivo* analysis.

**Table 3.** Some statistical parameters of Ca/P, Ca/Mg, Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na mass fraction ratios in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue (g·kg<sup>-1</sup>, dry weight basis)

Tissue	Mass fraction ratio	M	SD	SEM	Min	Max	Med	P0.025	P0.975
Intact cortical bone n=27	Ca/P	2.06	0.34	0.07	1.48	2.84	2.01	1.54	2.73
	(Ca/Mg)·0.01	0.811	0.308	0.066	0.500	2.08	0.739	0.518	1.54
	(Ca/Na)·0.01	0.358	0.074	0.016	0.142	0.498	0.349	0.195	0.496
	(Cl/Ca)·100	0.591	0.453	0.099	0.184	1.89	0.452	0.226	1.87
	Cl/Na	0.220	0.136	0.028	0.065	0.581	0.189	0.079	0.562
R-E sarcoma n=12	Ca/P	1.10	0.44	0.15	0.37	1.59	1.16	0.397	1.57
	(Ca/Mg)·0.01	0.334	0.112	0.050	0.170	0.471	0.361	0.182	0.462
	(Ca/Na)·0.01	0.091	0.042	0.014	0.038	0.160	0.092	0.038	0.154
	(Cl/Ca)·100	18.1	9.2	3.8	6.59	34.9	16.8	7.67	32.8
	Cl/Na	1.18	0.36	0.15	0.697	1.66	1.27	0.711	1.63

R-E sarcoma - reticuloendothelial sarcoma; M - arithmetic mean; SD – standard deviation; SEM – standard error of mean; Min – minimum value; Max – maximum value; Per. 0.025 – percentile with 0.025 level; Per. 0.975 – percentile with 0.975 level

**Table 4.** Comparison between mean values (M±SEM) of Ca/P, Ca/Mg, Ca/Na, Cl/Ca, and Cl/Na mass fraction ratios in intact cortical bone and reticuloendothelial sarcoma tissue

Mass fraction ratio	Intact cortical bone (I) n=27	Reticuloendothelial sarcoma (II) n=12	Ratio II to I <i>p</i> (Student's <i>t</i> -test)
Ca/P	2.06±0.07	1.10±0.15	0.53 <sup>c</sup>
(Ca/Mg)·0.01	0.81±0.07	0.33±0.05	0.41 <sup>c</sup>
(Ca/Na)·0.01	0.36±0.02	0.09±0.01	0.25 <sup>c</sup>
(Cl/Ca)·100	0.59±0.10	18±4	30.5 <sup>c</sup>
Cl/Na	0.22±0.03	1.20±0.15	5.45 <sup>c</sup>

M - arithmetic mean, SEM – standard error of mean, n – number of samples, <sup>c</sup> – *p* ≤ 0,001

As evident from the histograms, the Cl/Ca and Cl/Na ratios are the most information for the differential diagnostics. If (Cl/Ca)×100 ratio level of 2.0 (M±3SD) and Cl/Na ratio level of 0.6 (M±2SD) were assumed to be an upper limit of intact bone tissue (Fig.1), the results of estimation “reticuloendothelial sarcoma or intact bone” are the following:

Sensitivity={correct positive test (CPT)/[CPT + false negative test (FNT)]}×100% = 100-8%;

Specificity={correct negative test (CNT)/[CNT + false positive test (FPT)]}×100%=100-4%;

Accuracy = [(CPT+CNT)/(CPT+FNT+CNT+FPT)] ×100% = 100-2%.

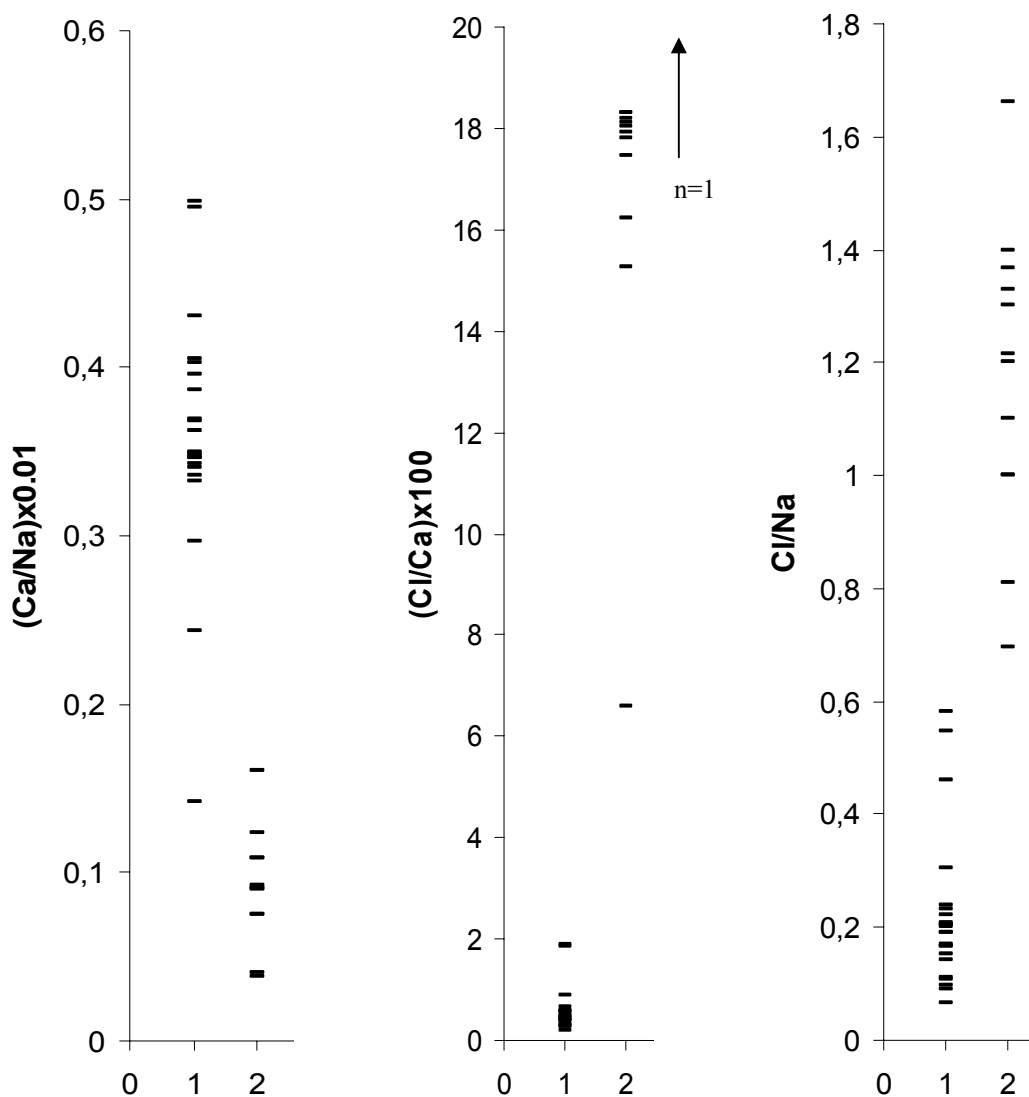


Fig. 1. Histograms of Ca/Na, Cl/Ca, Cl/Na ratios in all samples of intact bone (1) and reticuloendothelial sarcoma tissue (2)

The confidential intervals of these calculations with taking account of the number of the examined samples were taken from the Statistical tables by Genes.<sup>7</sup> In other words, if the analysis showed that (Cl/Ca)×100 and Cl/Na ratios do not below 2.0 and 0.6 respectively in tissue of bone examined site, one can diagnose a reticuloendothelial sarcoma with accuracy of 100-2%. Using Cl/Ca and Cl/Na-test makes it possible to find the 100-8% reticuloendothelial sarcoma cases (sensitivity).

**Conclusions**

INAA- SLR is the adequate analytical tools for the non-destructive determination of Ca, Cl, Mg, Na, and P contents in the human bone samples and samples of intraosseous lesions weighing about 50 mg. It needs no more than 15 min (1 min irradiation by neutrons + 1 min exposure + 10 min spectrometric measurement) for analysis. It was found that in reticuloendothelial sarcoma tissue the mass fractions of Cl and Na are significantly higher and the mass fraction of Ca is lower than in normal tissues. Moreover, it was shown that higher Cl/Ca and Cl/Na mass fraction ratios as well as lower Ca/P, Ca/Mg, and Ca/Na mass fraction ratios were typical of reticuloendothelial sarcoma tissue compared with intact cortical bone. Differences between Cl/Ca and Cl/Na ratios can be used as an additional test for differential diagnosis of normal bone and reticuloendothelial sarcoma.

**References**

1. Zaichick V, Kalashnikov VM, Bizer VA (1980) The *in vivo* analysis of Ca, Na and Cl in human limb tumours by neutron activation. In: Application of Nuclear Analytical Methods in Biology and Medicine. Institute of Medical Radiology, Obninsk, pp 58-74

2. Zaichick V (1993) The *in vivo* neutron activation analysis of calcium in the skeleton of normal subjects, with hypokinesia and bone diseases. J Radioanal Nucl Chem, Articles 169:307-316
3. Mosulishvili L, Kolomiitsev M, Dundua V, Shonia N, Danilova O (1975) Multi-element standards for instrumental neutron activation analysis of biological materials. J Radioanal Chem 26:175-188
4. Zaichick V (1995) Application of synthetic reference materials in the Medical Radiological Research Centre. Fresenius J Anal Chem 352:219-223
5. Zaichick S, Zaichick V (2010) The effect of age and gender on 38 chemical element contents in human femoral neck investigated by instrumental neutron activation analysis. Biol Trace Elem Res 137:1-12
6. Korelo A.M., Zaichick V. (1993) Software to optimize the multielement INAA of medical and environmental samples. In: Activation Analysis in Environment Protection. Joint Institute of Nuclear Research, Dubna, pp. 326-332
7. Genes VS (1967) Simple methods for cybernetic data treatment of diagnostic and physiological studies. Nauka, Moscow

## PREPARATION OF YTTRIUM MICROSPHERES BY GELATION OF AQUEOUS SOLUTION CONTAINING YTTRIUM IONS IN THE SILICON OIL

Garibov A.A., Ghahramani M.R., Agayev T.N.

*Institute of Radiation Problems, Azerbaijan national academy of sciences, Baku, Azerbaijan*

*In this paper the novel method to production of yttrium aluminum silicate microspheres is reported. Yttrium aluminum silicate microspheres around 20  $\mu\text{m}$  in size when aqueous solution of  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$  and  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  was added in to TEOS and pumped in to stirred silicon oil were obtained. The shapes of particles produced by this method are regular and very close to spheres. The amorphous structure, Y-O-Si bands, spherical shapes and composition investigated by using X-ray Diffraction (XRD), Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), Scanning Electron Microscopy (SEM), X-Ray Fluorescence Spectroscopy (XRF) and the Carbon / Sulfur Determinator, respectively. The result shows that the silicone oil spheroidization method can be greatly suitable way to production of yttrium aluminum silicate microspheres. This paper shows that the high temperature is not required to production of yttrium aluminum silicate microspheres.*

### 1. Introduction

In cancer treatment, the removal of the diseased parts is the most common methods. Unfortunately recovery or return of full function is seldom achieved. Noninvasive treatment techniques where only the cancer cells are destroyed were introduced in mid 80's. In 1987, microspheres of  $17\text{Y}_2\text{O}_3\text{-}19\text{Al}_2\text{O}_3\text{-}64\text{SiO}_2$  (mol %) glass, 20-30  $\mu\text{m}$  in diameter were shown to be effective for in situ radiotherapy of liver cancer [1-12]. The Yttrium-89 in glass, with neutron bombardment, activated to  $\beta$ -emitter  $^{90}\text{Y}$ , with a half life of 64.1 h. Other elements constituting the glass are not activated by the neutron bombardment. The glass is insoluble in body fluids and non-toxic. These glass microspheres have been subjected to clinical trials on the irradiation of diseased kidneys and malignant tumors in the liver, radiation synovectomy of arthritic joints and so on [4].

The melting method used to synthesis of yttrium aluminum silicate microspheres from yttrium, aluminum and silicon oxides requires high temperatures (>1600°C) [1, 12-14]. Therefore, it is difficult to control the purity and homogeneity of yttrium synthesized under these conditions whereas sol gels methods dissolve these problems.

Glass particles with irregular shapes were transformed to microspheres by using two different processes [1, 12-14]. In the first process, glass microspheres with particle size distribution in the range of 20–150  $\mu\text{m}$  were obtained by re-melting irregular particles in a hot flame. A torch burning a mixture of oxygen and petrol liquefied gas was used for this purpose. The microspheres were collected in a metal cylinder. Although this process has been previously reported and it is known as 'spheroidization by flame', for each type of glass the experimental parameters had to be adjusted to reach the best results. The second process consists of introducing glass particles with irregular shapes on the top of a vertical tubular furnace, and allowing them to fall down inside the furnace. This process is now named 'spheroidization by gravitational fall in a tubular furnace'.

In this paper we found new methods for production of spherical glass. The motivation behind this work is the spheroidization of Yttrium aluminum silicate micro particles without requiring to high temperature. With XRD, the stability of crystalline phases after heat treatment is investigated. With Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR), the absorption bands of the mineral phase are studied. XRF analysis was performed to determine the elements. The Carbon/Sulfur determinator was used to determination of carbon.

### 2. Experimental Procedures

The yttrium nitrate ( $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$ ) is achieved by reaction of yttrium oxide and nitric acid.  $\text{SiO}_2$  colloids were produced by adding tetra ethyl orthosilicate (TEOS) to water under stirring at room temperature. The molar composition of TEOS:  $\text{H}_2\text{O}$  was 1: 1, which is described as the optimum composition for obtaining Yttrium Aluminum Silicate sol. A typical reaction uses 1 ml of TEOS and 1 ml of  $\text{H}_2\text{O}$  which is including of 135 mg of  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$  and 250 mg of  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ . The Y and Al ions were incorporated in the  $\text{SiO}_2$  by replacing the water by an aqueous solution of  $\text{Y}(\text{NO}_3)_3$  and  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ , respectively.

Prepared sol were loaded into a syringe and pumped through a 0.4 mm diameter nozzle into silicone oil under magnetic stirring (100 rpm). The silicone oil thermostated at 75-80°C. The sol droplets were therefore converted into solid gel spheres into the silicone oil after 30 minutes.

Microspheres were separated from the silicone oil by precipitation and washed with 30 ml of petroleum ether and then washed with 10 ml of diethyl ether to remove the trace of silicone oil from the surface of particles. Finally the achieved microspheres were washed with 100mL of water.

For removal of remind acids and other additives, microspheres were heated at 800 °C for 3 h in a furnace. The temperature increase up to 800°C by 5°C/min after 3 h at 800°C it decrease by 10°C/min.

### 3. Results

#### 3.1. X-ray diffraction and differential thermal analysis (XRD)

For determination of crystallization, the samples were analyzed by X-ray diffraction system after heat treatment of samples at 800 °C and 1000 °C. Figure 1 shows the XRD patterns for microspheres with different compositions samples by named Azar1, Azar2, Azar3, and Azar4 after heat treatment at 800 °C for 3 h. while Figure 2 shows the XRD patterns for Azar3 sample after heat treatment at 800 °C and 1000 °C for 3 h.

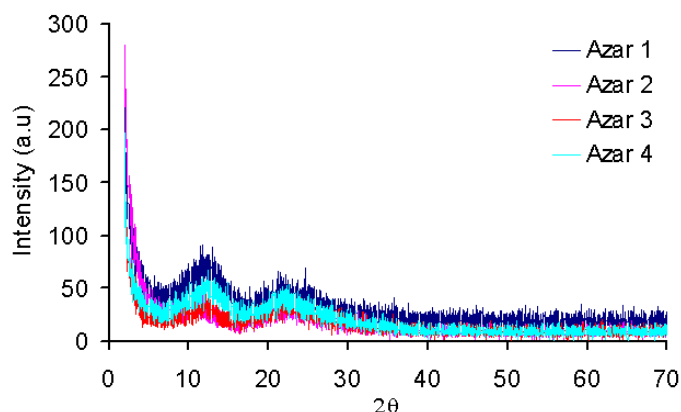


Fig.1: XRD patterns of Azar1, Azar2, Azar3, Azar4 samples after heat treatment at 800 °C for 3 h

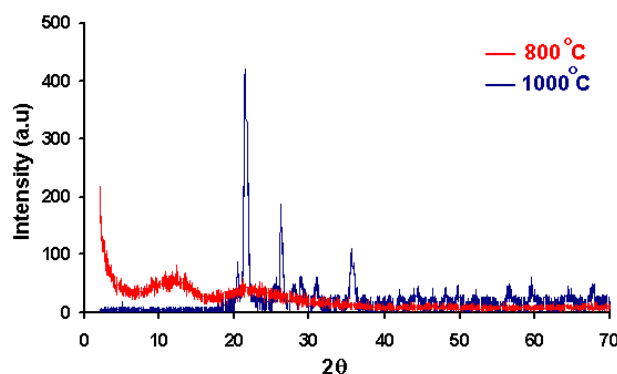


Fig.2: XRD spectra of Azar3 sample after heat treatment at 800 °C and 1000 °C for 3 h

#### 3.2. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR)

For FTIR spectra 2 mg of each sample added with 300 mg of spectral grade potassium bromide (KBr). The mixtures were ground and pressed to form a transparent disk. The transmittance technique is used, and the samples were scanned. Figure 3 shows the FTIR spectra in the range of 350-2850  $\text{cm}^{-1}$  of Azar1, Azar2, Azar3, and Azar4 samples after heat treatment at 800 °C for 3 h. This figure clearly shows that for all samples the two observed bands are visible around in the 700  $\text{cm}^{-1}$  and 867  $\text{cm}^{-1}$  wave numbers.

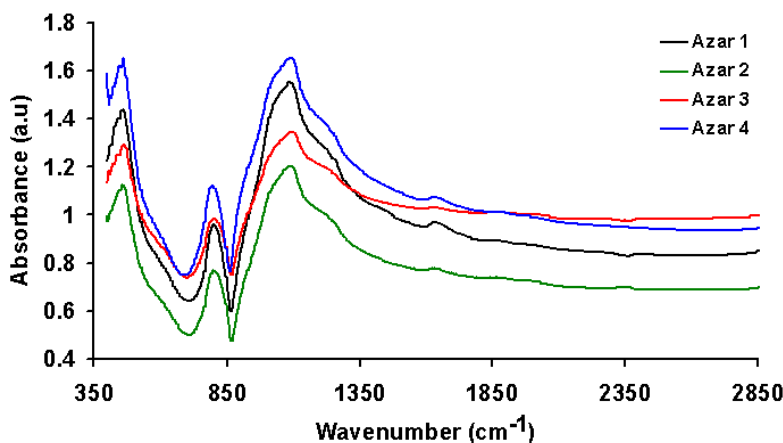


Fig.3: The FTIR spectra are for microspheres after heat treatment at 800 °C for 3 h.

#### 3.3. Scanning electron microscopy (SEM)

The SEM pictures of samples without and with silicon oil method are shown in figure 4 and 5 respectively. Figure 4 shows the micrograph of glass particles with irregular shapes prepared by sol gel method after annealing at 800 °C for 3 h without using silicon oil to spherodization. In figure 5 the micrographs of regular spherical particles is shown which that prepared by sol gel method and using silicon oil to spherodization after annealing at 800 °C for 3 h.



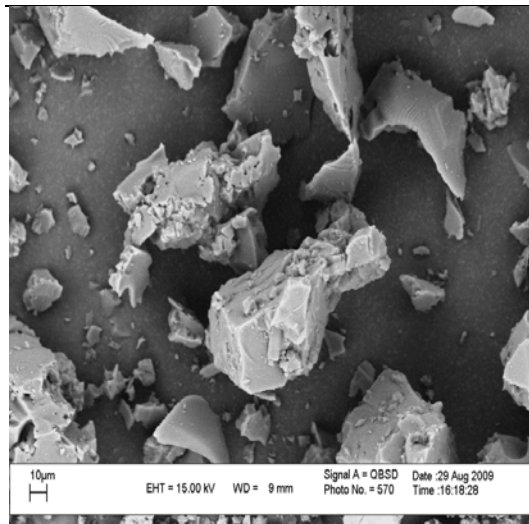


Fig.4: The SEM micrograph of glass particles without using method to spherodization.

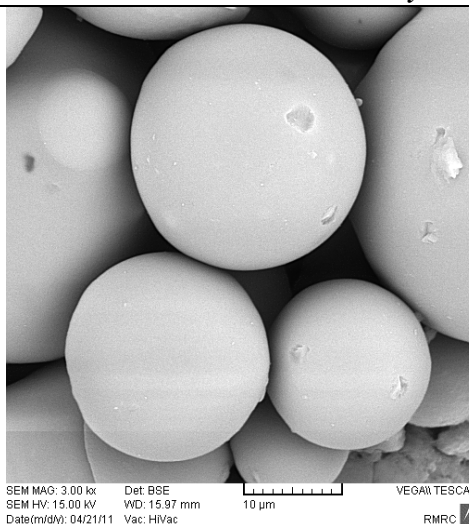


Fig.5: The SEM micrograph of glass particles with using silicon oil method to spherodization.

### 3.4. Chemical analyzing

Semi quantitative analysis was performed on Azar3 samples according to ASTM C 982-03. XRF analysis was performed to determine the elements and the Carbon / Sulfur Determinator was used to determination of carbon. Table 1 shows the elements in Azar3 samples microspheres.

Table 1: Elements in Azar3 samples

	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	Y <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	La & Lu	C
Amount (%)	7.2	63.4	29.4	<1	0.01

## 4. Discussion

### 4.1. X-ray diffraction and differential thermal analysis (XRD)

In the figure 1 the XRD patterns of samples after heat treatment at 800 °C are shown. From this figure we can conclude that the samples (Azar1, Azar2, Azar3, and Azar4) are not crystalline. In figure 2, the XRD spectra of Azar3 sample after heat treatment at 800 °C and 1000 °C after 3h is shown. This figure confirms that the crystalline is formed in 1000 °C. From figure 1 we can also conclude that these glasses are very stable and they have not any evidence of crystalline phases after heat treatment at 800 °C for 3 h. This figure also confirms that the yttrium aluminum silicate oxides exist in their amorphous state in these glass microspheres composite up to 800 °C. The nucleation of crystalline phases is undesirable because it can induce stresses in the glass structure and interfere in the performance of the microspheres by creating cracks and other defects [12].

### 4.2. Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR)

The spectrum for the microspheres (Fig. 3) clearly shows the absorption bands of the mineral phase are visible around in the 700 and 867 cm<sup>-1</sup> region. The peaks observed in the 700 and 867 cm<sup>-1</sup> can be attributed to the stretching mode in yttrium silicate (Si-O-Y) bonds [15-19].

### 4.3. Scanning electron microscopy (SEM)

Figure 4 shows glass particles with irregular shapes While Figure 5 shows regular spherical particles. Those figures confirm that the silicon oil method is the novel way to production of closed spherical particles. The superiority of this method rather than other methods [1, 12-14] is that the high temperature is not required.

Due to without using of high temperature, this method is very suitable way for production of metallic microspheres that there oxides have a high temperature melting point such as (Rhenium, Holmium, Samarium, Lutetium, Etc.) microspheres. Also this method is an appropriate way to production of non-metallic glass microspheres that there oxides have a low temperature boiling point such as phosphor glass microspheres.

Figure 5 shows the most of the particles obtained by this method are around 20 µm diameter. Therefore the procedure to obtain this material is appropriate.

## 5. Conclusions

Yttrium aluminum silicate microspheres around 20 µm in size when aqueous solution of Y(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> and Al(NO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> was added in to TEOS and pumped in to stirred silicon oil were obtained. The shapes of particles produced by this method are regular and very close to spheres. The prepared microspheres powders were characterized by X-ray Diffraction (XRD), Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR), Scanning Electron Microscopy (SEM), X-Ray Fluorescence Spectroscopy (XRF) and the Carbon / Sulfur Determinator, respectively. The results show that silicone oil spherodization method can greatly suitable to production of yttrium aluminum silicate microspheres. The XRD spectra shows that these microspheres are very stable and do not show any evidence of crystalline phases after heat treatment at 800 °C for 3 h. The two peaks in FTIR spectrum of the microspheres shows that the yttrium silicate has been formed.

Due to without using of high temperature, this method is very suitable way for production of metallic microspheres that their oxides have a high temperature melting point such as (Rhenium, Holmium, Samarium, Lutetium, Etc.) microspheres. Also it is a suitable way to production of non-metallic glass microspheres that their oxides have a low temperature boiling point such as phosphor glass microspheres.

With the chemical analyzing it has been shown that the 29.4 Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- 7.2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>- 63.4 SiO<sub>2</sub> (mol %) composition was formed.

#### 6. References

1. Delbert E. Day, Rolla; Gary J. Ehrhardt "Radioactive glass microspheres" United States Patent, Patent Number 5011677
2. Erbe EM, Day DE." Chemical Durability of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> Glasses for the In Vivo Delivery of Beta Radiation" *J Biomed Mater Res.* 1993 Oct. 27(10):1301-8
3. Masakazu Kawashita, et. al. "Preparation of Glass for Radiotherapy of Cancer by P + Ion Implantation at 100 keV" *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 121 (1997) 323-327
4. M. Kawashita, F. Miyaji, T. Kokubo" Preparation of Phosphorus-Containing Silica Glass Microspheres for Radiotherapy of Cancer by Ion Implantation" *Journal of Materials Science: Materials in Medicine* 10 (1999) 459-463
5. Masakazu Kawashita et Al. "Surface Structure and Chemical Durability of P<sup>+</sup> - Implanted Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> Glass for Radiotherapy of Cancer" *Journal of Non-Crystalline Solids* 255 (1999) 140-148
6. Masakazu Kawashita, et. al. "Enzymatic Preparation of Hollow Yttrium Oxide Microspheres for In Situ Radiotherapy of Deep-Seated Cancer" *J. Am. Ceram. Soc.*, 89 [4] 1347-1351 (2006)
7. Masakazu Kawashita and et. al. " Preparation of Radiotherapy Glass by Phosphorus Ion Implantation at 100 keV " 1997 John Wiley & Sons, Inc. CCC 0021-9304/97/040342-06
8. Masakazu Kawashita and et. al. " Preparation of Porous Yttrium Oxide Microparticles by Gelation of Ammonium Alginate in Aqueous Solution Containing Yttrium Ions" *J Mater Sci: Mater Med.* (2010) 21:1837-1843
9. Jamieson K. Christie and Antonio Tilocca "Short-Range Structure of Yttrium Alumino-Silicate Glass for Cancer Radiotherapy: Car-Parrinello Molecular Dynamics Simulations" *Advanced Engineering Materials* 2010, 12, No. 7 B326-B330
10. V. Simon, D. Eniu, A. Takács, K. Magyari, M. Neumann, S. Simon "X-Ray Photoemission Study of Yttrium Contained in Radiotherapy Systems " *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials* Vol. 7, No. 6, December 2005, p. 2853 – 2857
11. G. Heness and B. Ben-Nissan" *Innovative Bioceramics*" *Materials Forum* VOL. 27 (2004) 104 – 114
12. Frank F. Sene, José R. Martinelli, Emico Okuno "Synthesis and Characterization of Phosphate Glass Microspheres for Radiotherapy Applications" *Journal of Non-Crystalline Solids* 354 (2008) 4887-4893
13. Masakazu Kawashita, et. al. "Preparation of Ceramic Microspheres for In Situ Radiotherapy of Deep-Seated Cancer" *Biomaterials* 24 (2003) 2955-2963
14. K.P.Sree Kumar and et. al. " Studies on the Preparation and Plasma Spheroidization of Yttrium Aluminosilicate Glass Microspheres for Their Potential Application in Liver Brachytherapy " 2010 *J. Phys.: Conf. Ser.* 208 012117
15. S. M. Cho, Y. T. Kim and D. H. Yoon "Optical Characterization of Silica Based Waveguide Prepared by Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition" *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. 42, February 2003, pp. S947\_S951
16. Karl A. Gschneidner, Jr. and LeRoy Eyring "Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths" Vol. 8 Elsevier, 1986
17. R Palanivel and G Velraj "FTIR and FT-Raman Spectroscopic Studies of Fired Clay Artifacts Recently Excavated in Tamilnadu, India" *Indian Journal of Pure & Applied Physics* Vol. 45, June 2007, pp.501-508
18. Peter S. Gradeff and et. al "Synthesis of Yttrium and Lanthanide Silyloxy Complexes from Anhydrous Nitrate and Oxo Alkoxide Precursors and the X-ray Crystal Structure of [ Ce( OSiPh<sub>3</sub>),( THF) 3]( THF)" *Inorg. Chem.* 1990, 29, 420-424
19. James Joseph Chambers, PHD Theses "Reactions for Yttrium Silicate High-K Dielectrics" 2000, p253

### **RELATIONSHIP BETWEEN Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr CONTENTS IN THE INTACT CORTICAL BONE OF HUMAN FEMORAL NECK INVESTIGATED BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS**

Sofia ZAICHICK and Vladimir ZAICHICK\*

*Northwestern University, Chicago, IL, 60611, USA*

*\*Medical Radiological Research Center, 249020 Obninsk, Kaluga Region, Russia*

#### **Introduction**

The bioaccumulation of chemical elements in human bone is rather a complex process. Factors that influence bioaccumulation include age, gender, genetic inheritance, dietary habits, environmental quality, and so on. Many chemical elements in human organism act antagonistically and/or synergistically. Some elements in the bone can be substituted by other elements and, as a result, change biochemical reactions in humans. Variations in relative content of chemical elements in the bone lead to modulation/dysfunction of bone metabolism.

To use chemical element composition as estimation of bone health in clinical, geographical, environmental and occupational medicine, paleoanthropology, and other directions, it is necessary to know normal levels and age- and gender-related changes of chemical element ratios.

This work had three aims. The first one was to determine the Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck by instrumental neutron activation analysis with high resolution spectrometry of short-lived radionuclides (INAA-SLR) and to calculate some statistical parameters of the Cl/Ca, K/Ca, Mg/Ca, Mn/Ca, Na/Ca, P/Ca, Sr/Ca, Ca/P, Cl/P, K/P, Mg/P, Mn/P, Na/P, Sr/P, Ca/Mg, Cl/Mg, Mn/Mg, Na/Mg, P/Mg, Sr/Mg, Ca/Cl, K/Cl, Mg/Cl, Mn/Cl, Na/Cl, P/Cl, Sr/Cl, Ca/K, Cl/K, Mg/K, Mn/K, Na/K, P/K, Sr/K, Ca/Na, Cl/Na, K/Na, Mg/Na, Mn/Na, P/Na, Sr/Na and Mn/Sr mass fraction ratios. The second aim was to evaluate the effect of age and gender on mean values of ratios of chemical element mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck. The third aim was to estimate the inter-correlations between Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck.

All studies were approved by the Medical Radiological Research Center, Obninsk, Ethical Committees.

### **Materials and methods**

**Samples.** Cross-sections of intact femoral neck (mainly from the right side) were obtained at postmortems from intact cadavers (38 female and 47 male, 15–55 years old) within 24 h of death. The bone samples were immediately frozen at  $-18^{\circ}\text{C}$  until use. All subjects died suddenly due to automobile accident, falls, shootings, stabbing, hanging, acute alcohol poisoning, or hypothermia. The sample sides contacted with surgical instruments were cut off and soft tissue and blood were removed. A titanium tool was used to cut and to scrub samples. Samples were freeze dried until constant mass was obtained. A titanium scalpel was used to cut cortical bone samples weighing about 50–100 mg. The bone samples for INAA-SLR were sealed separately in thin polyethylene films washed with acetone and rectified alcohol. The sealed samples were placed in labeled polyethylene ampoules.

To determine contents of the elements by comparison with a known standard, biological synthetic standards (BSS) prepared from phenol–formaldehyde resins were used.<sup>1</sup> Corrected certified values of BSS element contents were reported by us before.<sup>2</sup> In addition to BSS, aliquots of commercial, chemically pure compounds were also used as standards. Ten CRM IAEA H-5 (Animal Bone) and SRM NIST 1486 (Bone Meal) sub-samples weighing about 50–100 mg were analyzed in the same conditions as bone samples to estimate the precision and accuracy of results.

**Methods.** The contents of Ca, Cl, Mg, Na, and P were determined by INAA-SLR using a horizontal channel equipped with the pneumatic rabbit system of the WWR-c research nuclear reactor. The neutron flux in the channel was  $1.7 \times 10^{13} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Ampoules with bone samples, BSS, intralaboratory-made standards, CRM and SRM were put into polyethylene rabbits and then irradiated separately for 60 s. Copper foils were used to assess neutron flux. The measurement of each sample was made 1 min after irradiation. The duration of the measurements was 10 min. A coaxial 98 cm<sup>3</sup> Ge (Li) detector and a spectrometric unit (NUC 8100), including a PC-coupled multichannel analyzer, were used for measurements. The spectrometric unit provided 2.9 keV resolution at the <sup>60</sup>Co 1332 keV line. The information of used nuclear reactions, radionuclides, gamma-energies, and other details of the analysis including the quality control of results were reported by us before.<sup>3,4</sup>

**Statistics.** A dedicated computer program of NAA mode optimization was used.<sup>5</sup> Using standard programs, the summary of statistics, arithmetic mean, standard deviation, standard error of mean, minimum and maximum values, median, percentiles with 0.025 and 0.975 levels were calculated for 42 different ratios of chemical element mass fractions. The reliability of difference in the results between two age groups and between females and males was evaluated by Student's t-test. A correlation analysis was used to identify relationships between elements.

### **Results and discussion**

Tables 1-3 represent certain statistical parameters (arithmetic mean, standard deviation, standard error of mean, minimal and maximal values, median, percentiles with 0.025 and 0.975 levels) of 42 different ratios of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of male and female femoral neck, and of both females and males, taken together.

Our mean values for Ca/P ratio in femoral neck cortical bone of healthy women and men (2.17 and 2.17) are very close to the median value of the published data and are in good agreement with the stoichiometric value for hydroxyapatite.<sup>6</sup> No published data referring to ratios of other chemical element mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck was found.

To estimate the effect of age on the chemical element ratios we examined two age groups of females and males taken separately: one comprised a younger group with ages from 15 to 35 years and the other comprised older people with ages ranging from 36 to 55 years (Table 4 and 5). The age-related changes in some mass fraction ratios were observed in cohorts of males only. It was found a statistically significant ( $\leq 0.05$ ) increase (about 15-20%) of the Na/Mg and P/Mg and, consequently, decrease Mg/Na and Mg/P of the mass fraction ratios in the cortical bone of intact human femoral neck.

We used the entire data set for both females and males taken separately, seeking to detect the presence of gender-related differences (see Table 6). A statistically significant tendency of gender-related differences was detected for Cl/Ca, K/Ca, Cl/P, K/P, Cl/Mg, K/Mg, Ca/Cl, Mg/Cl, Mn/Cl, Na/Cl, P/Cl, Ca/K, Mg/K, Na/K, P/K, Cl/Na and K/Na mass fractions ratios. It was shown that higher Ca/Cl, Mg/Cl, Na/Cl, P/Cl, Ca/K, Mg/K, Na/K and P/K mass fraction ratios and lower Cl/Ca, Cl/Mg, Cl/Na, Cl/P, K/Ca, K/Mg, K/Na, K/P, and Mn/Cl were typical of male cortical bone compared with female cortical bone of femoral neck. In the published data no age- or sex-related differences in Ca/P ratio were detected.<sup>6</sup> This is in agreement with our data. No published data referring to age- or gender-related changes of mass fraction ratios of other chemical element in the cortical bone of intact human femoral neck were found.

Table 7 depicts the inter-correlation calculations including all chemical elements identified by us. The positive inter-correlations of Ca mass fractions with Mg ( $p < 0.01$ ), Mn ( $p < 0.05$ ), Na ( $p < 0.01$ ), and P ( $p < 0.001$ ) mass fractions were found particularly in the intact cortical bone of human femoral neck. Moreover, the positive inter-correlations Cl-K ( $p < 0.01$ ), Cl-P ( $p < 0.05$ ), K-Mn ( $p < 0.05$ ), K-Sr ( $p < 0.05$ ), Mg-Na ( $p < 0.01$ ), Mg-P ( $p < 0.01$ ), and Mn-P ( $p < 0.01$ ) were observed too.

**Table 1.** Some statistical parameters of 42 different ratios of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of intact male femoral neck

Ratio	M	SD	SEM	Min	Max	Med	P0.025	P0.975
(Cl/Ca)×10 <sup>3</sup>	4.64	3.28	0.36	1.20	13.6	4.14	1.39	8.25
(K/Ca) ×10 <sup>3</sup>	1.71	0.72	0.11	0.508	3.18	1.51	0.568	3.17
(Mg/Ca) ×10 <sup>2</sup>	1.14	0.23	0.03	0.749	1.78	1.09	0.757	1.58
(Mn/Ca) ×10 <sup>6</sup>	1.78	0.70	0.11	0.446	4.36	1.71	0.638	3.38
(Na/Ca) ×10 <sup>2</sup>	2.20	0.37	0.06	1.60	3.27	2.20	1.64	3.21
P/Ca	0.468	0.057	0.008	0.361	0.588	0.489	0.363	0.553
(Sr/Ca) ×10 <sup>3</sup>	1.36	0.76	0.11	0.175	3.15	1.18	0.268	2.86
Ca/P	2.17	0.29	0.04	1.70	2.77	2.04	1.81	2.76
(Cl/P) ×10 <sup>2</sup>	0.991	0.534	0.080	0.294	3.21	0.889	0.361	2.00
(K/P) ×10 <sup>2</sup>	0.372	0.178	0.027	0.099	0.873	0.312	0.126	0.779
(Mg/P) ×10 <sup>2</sup>	2.49	0.67	0.10	1.48	4.55	2.33	1.62	3.87
(Mn/P) ×10 <sup>6</sup>	3.78	1.36	0.21	1.23	8.78	3.65	1.52	6.94
(Na/P) ×10 <sup>2</sup>	4.82	1.23	0.18	3.08	7.78	4.60	3.26	7.69
(Sr/P) ×10 <sup>3</sup>	2.98	1.73	0.26	0.358	6.71	2.57	0.534	6.30
Ca/Mg	90.9	18.1	2.7	56.2	134	91.5	63.5	132
Cl/Mg	0.403	0.181	0.027	0.110	0.878	0.394	0.118	0.748
K/Mg	0.151	0.071	0.011	0.022	0.341	0.139	0.039	0.302
(Mn/Mg) ×10 <sup>4</sup>	1.62	0.72	0.11	0.436	4.19	1.60	0.539	2.84
Na/Mg	1.98	0.43	0.06	1.32	3.33	1.97	1.32	2.79
P/Mg	42.6	9.9	1.5	22.0	67.4	42.9	25.9	61.8
Sr/Mg	0.121	0.071	0.010	0.015	0.271	0.112	0.022	0.262
Ca/Cl	285	172	26	73.7	833	242	121	723
K/Cl	0.484	0.426	0.064	0.078	2.65	0.394	0.120	1.47
Mg/Cl	4.61	2.48	0.37	0.747	13.4	4.33	1.21	9.55
(Mn/Cl) ×10 <sup>4</sup>	2.16	1.44	0.21	0.804	10.4	1.92	1.07	3.96
Na/Cl	6.40	4.20	0.619	2.09	20.1	5.05	2.41	16.4
P/Cl	129	67	10	31.1	340	113	50.0	277
Sr/Cl	0.399	0.332	0.049	0.044	1.27	0.315	0.044	1.18
Ca/K	709	351	54	315	1968	662	315	1773
Cl/K	3.30	2.42	0.37	0.378	12.7	2.54	0.690	8.36
Mg/K	8.98	7.27	1.10	2.93	46.1	7.18	3.31	25.4
(Mn/K) ×10 <sup>4</sup>	13.5	11.9	1.8	4.02	82.5	12.2	4.86	28.1
Na/K	16.9	13.6	2.1	7.06	93.4	13.1	7.17	38.0
P/K	332	170	26	115	1007	321	128	800
Sr/K	0.980	0.711	0.107	0.112	3.12	0.717	0.121	2.78
Ca/Na	46.6	7.4	1.1	30.6	62.6	45.4	31.2	60.8
Cl/Na	0.215	0.108	0.016	0.050	0.479	0.198	0.061	0.415
K/Na	0.076	0.032	0.005	0.011	0.142	0.076	0.026	0.139
Mg/Na	0.527	0.112	0.016	0.300	0.760	0.509	0.358	0.758
(Mn/Na) ×10 <sup>4</sup>	0.832	0.340	0.051	0.197	2.15	0.848	0.274	1.50
P/Na	22.0	5.1	0.8	12.9	32.5	21.7	13.0	30.6
Sr/Na	0.625	0.367	0.054	0.107	1.46	0.564	0.117	1.40
(Mn/Sr) ×10 <sup>3</sup>	2.16	2.31	0.34	0.377	11.5	1.48	0.435	7.71

M - arithmetic mean; SD – standard deviation; SEM – standard error of mean; Min – minimum value; Max – maximum value; Per. 0.025 – percentile with 0.025 level; Per. 0.975 – percentile with 0.975 level

**Table 2.** Some statistical parameters of 42 different ratios of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of intact female femoral neck

Ratio	M	SD	SEM	Min	Max	Med	P0.025	P0.975
(Cl/Ca)×10 <sup>3</sup>	6.68	3.88	0.68	1.77	22.9	5.49	2.43	16.1
(K/Ca) ×10 <sup>3</sup>	2.98	1.90	0.33	0.514	9.84	2.30	1.05	7.04
(Mg/Ca) ×10 <sup>2</sup>	1.20	0.30	0.05	0.537	1.77	1.24	0.604	1.62
(Mn/Ca) ×10 <sup>6</sup>	2.25	1.30	0.25	0.464	6.40	1.90	0.740	5.60
(Na/Ca) ×10 <sup>2</sup>	2.38	0.44	0.08	1.64	3.67	2.29	1.71	3.22
P/Ca	0.472	0.077	0.013	0.345	0.687	0.492	0.361	0.632
(Sr/Ca) ×10 <sup>3</sup>	1.66	1.04	0.20	0.216	4.30	1.52	0.288	3.69
Ca/P	2.17	0.36	0.06	1.46	2.90	2.03	1.58	2.77
(Cl/P) ×10 <sup>2</sup>	1.41	0.76	0.13	0.471	4.69	1.22	0.628	3.24
(K/P) ×10 <sup>2</sup>	0.627	0.362	0.063	0.100	1.85	0.556	0.210	1.32
(Mg/P) ×10 <sup>2</sup>	2.61	0.76	0.13	1.10	4.10	2.55	1.21	3.86
(Mn/P) ×10 <sup>6</sup>	4.95	2.94	0.57	0.972	17.0	4.33	1.85	11.5

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

(Na/P) × 10 <sup>2</sup>	5.19	1.32	0.23	3.26	7.72	4.89	3.35	7.57
(Sr/P) × 10 <sup>3</sup>	3.69	2.34	0.45	0.423	8.54	3.41	0.704	8.10
Ca/Mg	89.8	29.2	5.09	56.6	186	80.5	62.0	166
Cl/Mg	0.653	0.740	0.129	0.115	4.26	0.456	0.206	2.71
K/Mg	0.257	0.158	0.027	0.052	0.687	0.189	0.086	0.640
(Mn/Mg) × 10 <sup>4</sup>	1.98	1.13	0.22	0.262	5.27	1.68	0.530	4.74
Na/Mg	2.11	0.69	0.12	1.37	4.33	1.95	1.38	3.51
P/Mg	42.3	15.3	2.7	24.4	90.8	39.2	25.8	83.0
Sr/Mg	0.154	0.131	0.025	0.022	0.628	0.127	0.024	0.490
Ca/Cl	189	96.0	16.7	43.8	564	182	64.1	421
K/Cl	0.498	0.278	0.048	0.129	1.07	0.450	0.140	1.05
Mg/Cl	2.28	1.39	0.24	0.235	8.71	2.19	0.390	5.25
(Mn/Cl) × 10 <sup>4</sup>	4.06	2.03	0.39	0.564	10.5	3.69	1.00	8.35
Na/Cl	4.51	2.27	0.40	1.02	12.0	4.36	1.22	9.08
P/Cl	86.0	36.8	6.4	21.3	212	81.8	32.1	162
Sr/Cl	0.294	0.200	0.038	0.054	0.886	0.231	0.064	0.760
Ca/K	484	340	59	102	1946	436	146	1064
Cl/K	2.86	1.83	0.32	0.932	7.75	2.22	0.950	7.14
Mg/K	5.60	3.63	0.63	1.45	19.3	5.30	1.56	12.3
(Mn/K) × 10 <sup>4</sup>	10.8	7.05	1.36	2.09	32.4	8.16	2.19	25.9
Na/K	11.2	7.11	1.24	2.50	38.3	11.1	3.53	26.2
P/K	225	170	30	54.0	996	180	78.4	537
Sr/K	0.741	0.488	0.094	0.082	2.29	0.632	0.147	1.77
Ca/Na	43.3	7.61	1.33	27.3	61.1	43.7	31.2	58.4
Cl/Na	0.294	0.190	0.033	0.083	0.983	0.229	0.113	0.829
K/Na	0.126	0.078	0.014	0.026	0.400	0.090	0.040	0.291
Mg/Na	0.515	0.140	0.024	0.231	0.729	0.513	0.288	0.725
(Mn/Na) × 10 <sup>4</sup>	0.950	0.544	0.105	0.153	2.69	0.846	0.270	2.38
P/Na	20.5	5.1	0.9	12.9	30.6	20.4	13.2	29.8
Sr/Na	0.704	0.446	0.086	0.110	1.92	0.599	0.118	1.61
(Mn/Sr) × 10 <sup>3</sup>	1.97	1.69	0.35	0.192	7.69	1.64	0.378	5.89

M - arithmetic mean; SD – standard deviation; SEM – standard error of mean; Min – minimum value; Max – maximum value; Per. 0.025 – percentile with 0.025 level; Per. 0.975 – percentile with 0.975 level

**Table 3.** Some statistical parameters of 42 different ratios of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of both males and females femoral neck, taken together

Ratio	M	SD	SEM	Min	Max	Med	P0.025	P0.975
(Cl/Ca) × 10 <sup>3</sup>	5.50	3.24	0.37	1.20	22.9	4.78	1.57	13.6
(K/Ca) × 10 <sup>3</sup>	2.26	1.50	0.17	0.508	9.84	1.78	0.550	5.14
(Mg/Ca) × 10 <sup>2</sup>	1.17	0.26	0.03	0.537	1.78	1.17	0.714	1.59
(Mn/Ca) × 10 <sup>6</sup>	1.96	0.99	0.12	0.446	6.40	1.76	0.580	4.56
(Na/Ca) × 10 <sup>2</sup>	2.28	0.41	0.05	1.60	3.67	2.26	1.64	3.26
P/Ca	0.470	0.065	0.007	0.345	0.687	0.489	0.362	0.591
(Sr/Ca) × 10 <sup>3</sup>	1.47	0.88	0.10	0.175	4.30	1.25	0.254	3.20
Ca/P	2.17	0.32	0.04	1.46	2.90	2.04	1.69	2.76
(Cl/P) × 10 <sup>2</sup>	1.17	0.67	0.08	0.294	4.69	1.07	0.375	2.90
(K/P) × 10 <sup>2</sup>	0.483	0.300	0.034	0.099	1.85	0.361	0.120	1.14
(Mg/P) × 10 <sup>2</sup>	2.54	0.71	0.08	1.10	4.55	2.41	1.47	3.88
(Mn/P) × 10 <sup>6</sup>	4.22	2.16	0.26	0.972	17.0	3.88	1.44	8.59
(Na/P) × 10 <sup>2</sup>	4.98	1.27	0.14	3.08	7.78	4.65	3.26	7.72
(Sr/P) × 10 <sup>3</sup>	3.24	2.00	0.24	0.358	8.55	2.85	0.504	7.85
Ca/Mg	90.4	23.3	2.6	56.2	186	85.2	62.8	140
Cl/Mg	0.508	0.509	0.057	0.110	4.26	0.429	0.116	0.951
K/Mg	0.196	0.127	0.014	0.022	0.688	0.153	0.048	0.504
(Mn/Mg) × 10 <sup>4</sup>	1.76	0.90	0.11	0.262	5.27	1.65	0.497	4.25
Na/Mg	2.04	0.55	0.06	1.32	4.33	1.95	1.32	3.30
P/Mg	42.5	12.4	1.4	22.0	90.8	41.5	25.8	68.4
Sr/Mg	0.134	0.098	0.011	0.015	0.628	0.114	0.022	0.336
Ca/Cl	244	152	17	43.8	833	209	73.3	639
K/Cl	0.490	0.368	0.042	0.078	2.65	0.426	0.125	1.12
Mg/Cl	2.81	1.74	0.20	0.235	9.09	2.33	1.10	8.63
(Mn/Cl) × 10 <sup>4</sup>	4.40	2.32	0.27	0.564	13.4	4.10	1.05	9.83
Na/Cl	5.61	3.63	0.41	1.02	20.1	4.91	1.84	14.9
P/Cl	111	59.8	6.8	21.3	340	93.3	34.5	267

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

Sr/Cl	0.360	0.293	0.034	0.044	1.27	0.254	0.045	1.18
Ca/K	612	362	42	102	1968	562	196	1818
Cl/K	3.11	2.19	0.25	0.378	12.7	2.35	0.905	8.01
Mg/K	7.53	6.18	0.71	1.45	46.1	6.54	2.00	21.0
(Mn/K) × 10 <sup>4</sup>	12.5	10.3	1.2	2.09	82.5	11.1	3.09	29.5
Na/K	14.5	11.6	1.3	2.50	93.4	12.7	3.87	38.3
P/K	286	177	20	54.0	1007	277	87.4	835
Sr/K	0.889	0.642	0.076	0.082	3.11	0.702	0.117	2.42
Ca/Na	45.2	7.6	0.9	27.3	62.6	44.3	30.7	60.9
Cl/Na	0.248	0.152	0.017	0.050	0.983	0.204	0.067	0.546
K/Na	0.098	0.061	0.007	0.011	0.400	0.079	0.026	0.258
Mg/Na	0.522	0.123	0.014	0.231	0.760	0.513	0.303	0.758
(Mn/Na) × 10 <sup>4</sup>	0.876	0.428	0.050	0.153	2.69	0.848	0.242	2.16
P/Na	21.3	5.1	0.6	12.9	32.5	21.5	12.9	30.6
Sr/Na	0.654	0.397	0.046	0.107	1.92	0.578	0.113	1.45
(Mn/Sr) × 10 <sup>3</sup>	2.09	2.10	0.25	0.192	11.5	1.48	0.418	7.70

M - arithmetic mean; SD – standard deviation; SEM – standard error of mean; Min – minimum value; Max – maximum value; Per. 0.025 – percentile with 0.025 level; Per. 0.975 – percentile with 0.975 level

**Table 4.** Effect of age on mean values (M±SEM) of ratios of chemical element mass fractions in the cortical bone of intact female femoral neck (Student's *t*-test)

Ratio	(15-35) year	(36-55) year	(36-55)/(15-35) year	<i>p</i>
(Cl/Ca) × 10 <sup>3</sup>	7.08±1.37	6.35±0.51	0.90	N.S.
(K/Ca) × 10 <sup>3</sup>	2.82±0.32	3.12±0.55	1.11	N.S.
(Mg/Ca) × 10 <sup>2</sup>	1.18±0.08	1.22±0.07	1.03	N.S.
(Mn/Ca) × 10 <sup>6</sup>	2.31±0.36	2.19±0.36	0.95	N.S.
(Na/Ca) × 10 <sup>2</sup>	2.48±0.12	2.31±0.10	0.93	N.S.
P/Ca	0.448±0.015	0.492±0.020	1.10	N.S.
(Sr/Ca) × 10 <sup>3</sup>	1.59±0.32	1.74±0.24	1.09	N.S.
Ca/P	2.27±0.08	2.09±0.09	0.92	N.S.
(Cl/P) × 10 <sup>2</sup>	1.54±0.27	1.29±0.09	0.84	N.S.
(K/P) × 10 <sup>2</sup>	0.646±0.080	0.612±0.096	0.95	N.S.
(Mg/P) × 10 <sup>2</sup>	2.71±0.23	2.53±0.15	0.93	N.S.
(Mn/P) × 10 <sup>6</sup>	5.27±0.96	4.61±0.59	0.87	N.S.
(Na/P) × 10 <sup>2</sup>	5.62±0.33	4.83±0.30	0.86	N.S.
(Sr/P) × 10 <sup>3</sup>	3.52±0.67	3.88±0.62	1.10	N.S.
Ca/Mg	93.5±9.4	86.7±5.3	0.93	N.S.
Cl/Mg	0.807±0.280	0.524±0.038	0.65	N.S.
K/Mg	0.268±0.042	0.248±0.037	0.93	N.S.
(Mn/Mg) × 10 <sup>4</sup>	2.07±0.36	1.88±0.24	0.91	N.S.
Na/Mg	2.27±0.21	1.98±0.14	0.88	N.S.
P/Mg	42.5±5.0	42.1±2.7	0.99	N.S.
Sr/Mg	0.155±0.045	0.153±0.023	0.99	N.S.
Ca/Cl	199±31	180±18	0.90	N.S.
K/Cl	0.526±0.078	0.475±0.062	0.90	N.S.
Mg/Cl	2.50±0.49	2.10±0.18	0.84	N.S.
(Mn/Cl) × 10 <sup>4</sup>	4.26±0.64	3.83±0.45	0.90	N.S.
Na/Cl	4.93±0.71	4.15±0.42	0.84	N.S.
P/Cl	85.9±11.5	86.0±7.1	1.00	N.S.
Sr/Cl	0.284±0.061	0.305±0.048	1.07	N.S.
Ca/K	431±51	528±100	1.23	N.S.
Cl/K	2.84±0.51	2.87±0.42	1.01	N.S.
Mg/K	5.20±0.78	5.93±0.97	1.14	N.S.
(Mn/K) × 10 <sup>4</sup>	9.83±1.61	11.9±2.3	1.21	N.S.
Na/K	10.5±1.3	11.7±2.0	1.11	N.S.
P/K	196±26	250±50	1.28	N.S.
Sr/K	0.623±0.106	0.868±0.155	1.39	N.S.
Ca/Na	41.6±1.9	44.6±1.8	1.07	N.S.
Cl/Na	0.305±0.066	0.284±0.028	0.93	N.S.
K/Na	0.115±0.012	0.135±0.023	1.17	N.S.
Mg/Na	0.485±0.037	0.540±0.032	1.11	N.S.
(Mn/Na) × 10 <sup>4</sup>	0.929±0.151	0.972±0.150	1.05	N.S.
P/Na	18.7±1.2	21.9±1.2	1.17	N.S.
Sr/Na	0.655±0.138	0.756±0.103	1.15	N.S.

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

(Mn/Sr) × 10 <sup>3</sup>	2.03±0.35	1.88±0.69	0.93	N.S.
---------------------------	-----------	-----------	------	------

M – Arithmetical mean, SEM – standard error of mean, N.S. – non significant

**Table 5.** Effect of age on mean values (M±SEM) of ratios of chemical element mass fractions in the cortical bone of intact male femoral neck (Student's *t*-test)

Ratio	(15-35) year	(36-55) year	(36-55)/(15-35) year	<i>p</i>
(Cl/Ca) × 10 <sup>3</sup>	4.74±0.47	4.55±0.53	0.96	N.S.
(K/Ca) × 10 <sup>3</sup>	1.77±0.17	1.65±0.14	0.93	N.S.
(Mg/Ca) × 10 <sup>2</sup>	1.21±0.05	1.08±0.05	0.89	N.S.
(Mn/Ca) × 10 <sup>6</sup>	1.75±0.18	1.81±0.12	1.03	N.S.
(Na/Ca) × 10 <sup>2</sup>	2.18±0.08	2.22±0.08	1.02	N.S.
P/Ca	0.454±0.014	0.480±0.010	1.06	N.S.
(Sr/Ca) × 10 <sup>3</sup>	1.43±0.21	1.29±0.11	0.90	N.S.
Ca/P	2.25±0.07	2.10±0.05	0.93	N.S.
(Cl/P) × 10 <sup>2</sup>	1.04±0.10	0.95±0.12	0.91	N.S.
(K/P) × 10 <sup>2</sup>	0.400±0.045	0.346±0.031	0.87	N.S.
(Mg/P) × 10 <sup>2</sup>	2.75±0.16	2.27±0.11	0.83	≤0.05
(Mn/P) × 10 <sup>6</sup>	3.82±0.37	3.75±0.23	0.98	N.S.
(Na/P) × 10 <sup>2</sup>	4.95±0.28	4.71±0.25	0.95	N.S.
(Sr/P) × 10 <sup>3</sup>	3.23±0.46	2.75±0.27	0.85	N.S.
Ca/Mg	85.0±3.3	96.1±3.9	1.13	N.S.
Cl/Mg	0.403±0.042	0.404±0.035	1.00	N.S.
K/Mg	0.149±0.015	0.152±0.016	1.02	N.S.
(Mn/Mg) × 10 <sup>4</sup>	1.50±0.19	1.72±0.12	1.15	N.S.
Na/Mg	1.84±0.08	2.10±0.09	1.14	≤0.05
P/Mg	38.7±2.0	46.0±2.0	1.19	≤0.05
Sr/Mg	0.118±0.016	0.125±0.014	10.6	N.S.
Ca/Cl	289±45	282±29	0.98	N.S.
K/Cl	0.509±0.114	0.460±0.067	0.90	N.S.
Mg/Cl	3.49±0.53	2.93±0.25	0.84	N.S.
(Mn/Cl) × 10 <sup>4</sup>	4.30±0.64	4.86±0.43	1.13	N.S.
Na/Cl	6.50±1.11	6.32±0.68	0.97	N.S.
P/Cl	125±17	133±12	1.06	N.S.
Sr/Cl	0.408±0.078	0.391±0.064	0.96	N.S.
Ca/K	676±60	741±89	1.10	N.S.
Cl/K	3.18±0.46	3.42±0.57	1.08	N.S.
Mg/K	8.18±0.81	9.71±1.97	1.19	N.S.
(Mn/K) × 10 <sup>4</sup>	11.3±1.2	15.4±3.2	1.36	N.S.
Na/K	14.7±1.4	19.0±3.7	1.29	N.S.
P/K	306±27	357±44	1.17	N.S.
Sr/K	0.894±0.135	1.06±0.17	1.19	N.S.
Ca/Na	47.0±1.7	46.2±1.5	0.98	N.S.
Cl/Na	0.228±0.025	0.203±0.020	0.89	N.S.
K/Na	0.082±0.008	0.072±0.006	0.88	N.S.
Mg/Na	0.566±0.025	0.494±0.020	0.87	≤0.05
(Mn/Na) × 10 <sup>4</sup>	0.828±0.090	0.835±0.058	1.01	N.S.
P/Na	21.6±1.2	22.3±1.0	1.03	N.S.
Sr/Na	0.664±0.099	0.593±0.056	0.89	N.S.
(Mn/Sr) × 10 <sup>3</sup>	2.52±0.69	1.88±0.29	0.75	N.S.

M – Arithmetical mean, SEM – standard error of mean, N.S. – non significant

**Table 6.** Effect of gender on mean values (M±SEM) of ratios of chemical element mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck (Student's *t*-test)

Ratio	Females	Males	Males/ Females	<i>p</i>
(Cl/Ca) × 10 <sup>3</sup>	6.68±0.68	4.64±0.36	0.69	≤0.05
(K/Ca) × 10 <sup>3</sup>	2.98±0.33	1.71±0.11	0.57	≤0.001
(Mg/Ca) × 10 <sup>2</sup>	1.20±0.05	1.14±0.03	0.95	N.S.
(Mn/Ca) × 10 <sup>6</sup>	2.25±0.25	1.78±0.11	0.79	N.S.
(Na/Ca) × 10 <sup>2</sup>	2.38±0.08	2.20±0.06	0.92	N.S.
P/Ca	0.472±0.077	0.468±0.008	0.99	N.S.
(Sr/Ca) × 10 <sup>3</sup>	1.66±0.20	1.36±0.11	0.82	N.S.
Ca/P	2.17±0.06	2.17±0.04	1.00	N.S.
(Cl/P) × 10 <sup>2</sup>	1.41±0.13	0.991±0.080	0.70	≤0.01



*Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry*

(K/P) × 10 <sup>2</sup>	0.627±0.063	0.372±0.027	0.59	≤0.001
(Mg/P) × 10 <sup>2</sup>	2.61±0.13	2.49±0.10	0.95	N.S.
(Mn/P) × 10 <sup>6</sup>	4.95±0.57	3.78±0.21	0.76	N.S.
(Na/P) × 10 <sup>2</sup>	5.19±0.23	4.82±0.18	0.93	N.S.
(Sr/P) × 10 <sup>3</sup>	3.69±0.45	2.98±0.26	0.81	N.S.
Ca/Mg	89.8±5.1	90.9±2.7	1.01	N.S.
Cl/Mg	0.653±0.129	0.403±0.027	0.62	N.S.
K/Mg	0.257±0.027	0.151±0.011	0.59	≤0.001
(Mn/Mg) × 10 <sup>4</sup>	1.98±0.22	1.62±0.11	0.82	N.S.
Na/Mg	2.11±0.12	1.98±0.06	0.94	N.S.
P/Mg	42.3±2.7	42.6±1.5	1.01	N.S.
Sr/Mg	0.154±0.025	0.121±0.010	0.79	N.S.
Ca/Cl	189±17	285±26	1.51	≤0.01
K/Cl	0.498±0.048	0.484±0.064	0.97	N.S.
Mg/Cl	2.28±0.24	4.61±0.37	2.02	≤0.001
(Mn/Cl) × 10 <sup>4</sup>	4.06±0.39	2.16±0.21	0.53	≤0.001
Na/Cl	4.51±0.40	6.40±0.62	1.42	≤0.05
P/Cl	86.0±6.4	129±10	1.53	≤0.001
Sr/Cl	0.294±0.038	0.399±0.049	1.36	N.S.
Ca/K	484±59	709±54	1.46	≤0.01
Cl/K	2.86±0.032	3.30±0.37	1.15	N.S.
Mg/K	5.60±0.63	8.98±1.10	1.60	≤0.01
(Mn/K) × 10 <sup>4</sup>	10.8±1.4	13.5±1.8	1.25	N.S.
Na/K	11.2±1.2	16.9±2.1	1.51	≤0.05
P/K	225±30	332±26	1.48	≤0.01
Sr/K	0.741±0.094	0.980±0.107	1.32	N.S.
Ca/Na	43.3±1.3	46.6±1.1	1.08	N.S.
Cl/Na	0.294±0.033	0.215±0.016	0.73	≤0.05
K/Na	0.126±0.014	0.076±0.005	0.60	≤0.01
Mg/Na	0.515±0.024	0.527±0.016	1.02	N.S.
(Mn/Na) × 10 <sup>4</sup>	0.950±0.105	0.832±0.051	0.88	N.S.
P/Na	20.5±0.9	22.0±0.8	1.07	N.S.
Sr/Na	0.704±0.086	0.625±0.054	0.89	N.S.
(Mn/Sr) × 10 <sup>3</sup>	1.97±0.35	2.16±0.34	1.10	N.S.

M – Arithmetical mean, SEM – standard error of mean, N.S. – non significant

**Table 7.** Inter-correlations (*r* – coefficient of correlation) of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr mass fractions in the cortical bone of intact human femoral neck

Element	Ca	Cl	K	Mg	Mn	Na	P	Sr
Ca	<b>1.00</b>	0.195	-0.018	0.459 <sup>b</sup>	0.248 <sup>a</sup>	0.409 <sup>b</sup>	0.804 <sup>c</sup>	-0.072
Cl	0.195	<b>1.00</b>	0.361 <sup>b</sup>	0.041	0.230	0.012	0.307 <sup>a</sup>	0.205
K	-0.018	0.361 <sup>b</sup>	<b>1.00</b>	0.137	0.294 <sup>a</sup>	0.119	0.079	0.300 <sup>a</sup>
Mg	0.459 <sup>b</sup>	0.041	0.137	<b>1.00</b>	0.148	0.348 <sup>b</sup>	0.337 <sup>a</sup>	-0.059
Mn	0.248 <sup>a</sup>	0.230	0.294 <sup>a</sup>	0.148	<b>1.00</b>	0.187	0.381 <sup>b</sup>	-0.006
Na	0.409 <sup>b</sup>	0.012	0.119	0.348 <sup>b</sup>	0.187	<b>1.00</b>	0.192	-0.151
P	0.804 <sup>c</sup>	0.307 <sup>a</sup>	0.079	0.337 <sup>a</sup>	0.381 <sup>b</sup>	0.192	<b>1.00</b>	-0.026
Sr	-0.072	0.205	0.300 <sup>a</sup>	-0.059	-0.006	-0.151	-0.026	<b>1.00</b>

Statistically significant difference: <sup>a</sup> -  $p \leq 0.05$ , <sup>b</sup> -  $p \leq 0.01$ , <sup>c</sup> -  $p \leq 0.001$ .

**Conclusions**

All the deceased were citizens of Obninsk, a small city of non-industrial region 105 km south-west from Moscow. None of those who died a sudden death had suffered from any systematic or chronic disorders before. Thus, our data for all investigated mass fraction ratios in the cortical bone of intact human femoral neck may serve as indicative normal values for residents of the Central European region of Russia.

**References**

1. Mosulishvili L, Kolomiitsev M, Dundua V, Shonia N, Danilova O (1975) Multi-element standards for instrumental neutron activation analysis of biological materials. *J Radioanal Chem* 26:175–188
2. Zaichick V (1995) Application of synthetic reference materials in the Medical Radiological Research Centre. *Fresenius J Anal Chem* 352:219–223
3. Zaichick V (2004) INAA application in the age dynamics assessment of Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr contents in the cortical bone of human femoral neck. *J Radioanal Nucl Chem* 259:351–354
4. Zaichick S, Zaichick V (2010) The effect of age and gender on 38 chemical element contents in human femoral neck investigated by instrumental neutron activation analysis. *Biol Trace Elem Res* 137:1–12

5. Korelo AM, Zaichick V (1993) Software to optimize the multielement INAA of medical and environmental samples. In: Activation Analysis in Environment Protection. Joint Institute of Nuclear Research, Dubna, pp 326–332
6. Zaichick V, Tzaphlidou M (2002) Determination of calcium, phosphorus, and the calcium/phosphorus ratio in cortical bone from the human femoral neck by neutron activation analysis. *Appl Rad Isotop* 56:781–786

## АДСОРБЦИЯ РАДИОНУКЛИДА КОБАЛЬТ-57 НА КИСЛОТНО-АКТИВИРОВАННОМ БЕНТОНИТЕ

Егамедиев С.Х., Нурбаева Д.А., Саидова З.А., Таштемирова Н. Ж.  
*Институт Ядерной Физики АН РВз, Ташкент, Республика Узбекистан*

Эффективные и недорогостоящие сорбенты всегда востребованы в промышленности и хозяйственной деятельности. Этим требованиям в большой мере отвечают сорбционные материалы на основе бентонитовых глин, которые характеризуются относительной дешевизной и обладают высокой удельной поверхностью. Основным компонентом бентонитовых глин – природных алюмосиликатов является монтмориллонит. Это слоистый минерал с расширяющейся решеткой, его кристаллические и структурные характеристики варьируют в исключительно большом диапазоне. Как известно, бентонитовые глины обладают превосходными адсорбционными и ионообменными свойствами, что позволит с использованием различных методов модифицирования получать эффективные сорбенты для извлечения и концентрирования различных радионуклидов [1].

Для придания сорбционных и других полезных свойств бентониты подвергают активации, для чего используют различные физические и химические методы воздействия: механические, термические, ионный обмен, обработку кислотами. Сущность модифицирования состоит в избирательном изменении химического состава бентонитов, в результате которого можно ожидать увеличения удельной поверхности, удельного объема пор, кислотности поверхности и повышения термостабильности материалов.

Например, модифицирование монтмориллонитовых глин различными полиядерными полигидрооксокомплексами металлов (Al, Fe, Zr, Ti) приводит к образованию регулярных пористых структур, обладающих уникальными физико-химическими свойствами. Высокие значения удельной поверхности и объема пор, моноразмерность первичных частиц активированных монтмориллонитов позволяют использовать их для синтеза композиционных наноматериалов, которые занимают промежуточное положение между микро- (<0,7 нм) и мезо- (3,0-5,0 нм) пористыми традиционными синтетическими носителями (SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, цеолитами и др.). Такие наноматериалы представляют большой интерес для использования в практике адсорбции и в качестве носителей катализаторов [2].

Известно, что кислотная обработка бентонитовых глин увеличивает удельную поверхность монтмориллонита от 60 до 80-460 м<sup>2</sup>/г, при этом суммарный удельный объем пор возрастает от 0,1 в природном монтмориллоните до 0,55 см<sup>3</sup>/г в активированном. В зависимости от природы и силы кислоты кристаллическая структура монтмориллонита может быть сохранена, как это наблюдается в случае обработки уксусной, серной, азотной, соляной кислотами и слабыми растворами фосфорной кислоты, либо разрушена, например при обработке 3 М фосфорной кислотой. С целью получения новых сорбционных материалов обработка бентонитовых глин растворами минеральных кислот средних концентраций является приемлемой, так как при ней извлекаются в раствор обменные (Na<sup>+</sup>, Ca<sup>2+</sup>) и октаэдрические катионы (Al<sup>3+</sup>, Fe<sup>3+</sup>, Mg<sup>2+</sup>) и при этом сохраняется структура алюмосиликатных слоев [2].

Следует отметить, что в литературе отсутствуют сведения по комбинированной кислотной обработке бентонитовых глин и ее влиянию на адсорбцию радионуклидов. Поэтому разработка и поиск новых методов модифицирования бентонитов позволит разработать новые сорбенты для извлечения радионуклидов из различных жидких сред.

Целью настоящей работы является изучение адсорбции радионуклида кобальта <sup>57</sup>Co без носителя на бентоните в зависимости от способа предварительной обработки бентонита, от времени сорбции, от pH раствора, от массы сорбента. Также изучена возможность иммобилизации радионуклида <sup>57</sup>Co без носителя в структуре бентонита с помощью высокотемпературного обжига.

Реагенты и приборы. В качестве радиоактивного индикатора использовали радионуклид <sup>57</sup>Co без носителя. Радиометрические измерения проводили при помощи четырехканального анализатора NR 424 L (Венгрия). Измерение pH растворов проводили с помощью универсальной индикаторной бумаги и pH метра.

Для приготовления сорбентов использовали бентонитовую щелочноземельную глину коммерческого препарата «Алиса» следующего состава (в масс.%): SiO<sub>2</sub>-60,58; TiO<sub>2</sub>-1,00; Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-11,89; Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-5,13; MgO-2,35; CaO-0,43; Na<sub>2</sub>O-1,63; K<sub>2</sub>O-2,94; CO<sub>2</sub>-0,03; п.п.п.-10,29. На основе бентонитовой глины было приготовлено 9 образцов сорбентов. Первый образец (1) представлял природный бентонит размолотый до размера частиц 200 меш, промытый водой и высушенный при комнатной температуре. Второй образец (2) представлял природный бентонит, промытый водой и прокаленный при 400°C. Третий образец (3) бентонита представлял собой порошок слабокоричневой окраски, который был предварительно промыт водой и активированный 3 М HCl и прокаленный при 200°C в течение три часов. Образцы (4,5,6) были приготовлены также на основе активированного 3 М HCl бентонита, но прокаливание образцов производили при 400 °C, 600°C и 800 °C соответственно. Образец (7,8) представляли собой порошки коричневого цвета, которые были предварительно промыты водой и подвергнуты обработке 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и 3 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> соответственно и прокаленные при 400°C в течение три часов. Образец (9) представлял собой порошок

слабоокрашенного цвета, который был предварительно промыт водой и подвергнут последовательной обработке 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, и затем прокаленный при 400 °С в течение три часов. Продолжительность активирования кислотами составляла 24 ч. Соотношение кислота/ бентонит составляла 10 мл раствора кислоты на 1 г бентонита. После декантации кислот бентонит промывался дистиллированной водой до pH водной вытяжки 6 и затем прокаливался при 400 °С в течение три часов. Размер частиц всех образцов бентонита составлял 200 меш.

**Методика.** Сорбцию радионуклида <sup>57</sup>Со на бентоните проводили в статических условиях с периодическим перемешиванием при соотношении фаз Т:Ж =1:25 при комнатной температуре. В качестве водных фаз использовали раствор 0,1 М HCl. Навеску бентонита (0,2 г) помещали в пеницилиновый флакон и добавляли 5 мл раствора 0,1 М HCl, содержащей радионуклид <sup>57</sup>Со. Требуемое значение pH устанавливали с помощью 0,1 М NaOH. Продолжительность адсорбции варьировалась в интервале от 1 ч до 24 ч. Были проведены эксперименты по десорбции радионуклида <sup>57</sup>Со из фазы бентонита. В качестве десорбирующих растворов использовали растворы 1М KCl и 0,1 М HCl. Также были проведены эксперименты по фиксации радионуклида <sup>57</sup>Со в структуре бентонита после предварительной сорбции с помощью высокотемпературного обжига. Образцы обжигали при 400 °С, 600 °С, 800 °С соответственно. Степень фиксации радионуклида оценивали по методу выщелачивания радионуклида с бентонита при контакте его с дистиллированной водой, с растворами 0,01 М HCl и 0,01 М HNO<sub>3</sub>.

Коэффициент распределения *D* в экспериментах по сорбции рассчитывали по формуле:

$$D = A_m / A_{эф} \times V_{эф} / m_c \quad (1)$$

где, *A<sub>m</sub>* – активность твердой фазы, имп/с, *A<sub>эф</sub>* – активность водной фазы, имп/с, *V<sub>эф</sub>* – объём водной фазы, мл., *m<sub>c</sub>* – масса сорбента, г.

**Полученные результаты.** Известно, что обработка природных минеральных сорбентов (ПМС) минеральными кислотами – один из важных способов получения высококачественных активированных продуктов, применяемых в качестве сорбентов в различных отраслях народного хозяйства [3]. При кислотной активации ПМС важную роль играют такие факторы, как природа кислоты, количественное соотношение кислоты и образца, температура обработки, продолжительность активирования. Учитывая это нами было изучено влияние предварительной обработки бентонита на сорбцию радионуклида <sup>57</sup>Со. Полученные результаты приведены в таблице 1. Изучение предварительной обработки бентонита показало, что наибольший коэффициент распределения <sup>57</sup>Со достигается после предварительной последовательной обработки бентонита растворами 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и последующего прокаливания бентонита при 400 °С. При этом коэффициент распределения составляет 7622, а процент адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Со составляет 99,7 %.

Таблица 1 - Влияние предварительной обработки бентонита на адсорбцию <sup>57</sup>Со из дистиллированной воды

№	Бентонит	Коэффициент распределения, D	Процент адсорбции, %
1	Необработанный (природный)	172	87,3
2	Термообработанный при 400 °С	540	95,6
3	Предварительно обработанный 3 М HCl и термообработанный при 200 °С	1970	98,7
4	Предварительно обработанный 3 М HCl и термообработанный при 400 °С	1770	98,6
5	Предварительно обработанный 3 М HCl и термообработанный при 600 °С	475	95,0
6	Предварительно обработанный 3 М HCl и термообработанный при 800 °С	80	76,1
7	Предварительно обработанный 1 М H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> и термообработанный при 400 °С	2260	98,9
8	Предварительно обработанный 3 М H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> и термообработанный при 400 °С	81	76,3
9	Последовательно обработанный 3 М HCl и 1 М H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> и термообработанный при 400 °С	7622	99,7

По-видимому это связано с тем что при кислотной активации изменяется пористая структура глин в сторону увеличения диаметра пор, а также изменяется структура активируемого сорбента. Следует отметить, что при отдельной обработке образцов бентонита растворами 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> соответственно также наблюдается количественная адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Со на бентоните. При обработке бентонита 3 М HCl коэффициент распределения радионуклида <sup>57</sup>Со составляет 1770, а в случае обработки 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> коэффициент распределения радионуклида <sup>57</sup>Со составляет 2260. По видимому, при обработке раствором фосфорной кислотой бентонита не исключается возможность образования новых фаз, таких как фосфаты кальция и фосфатов трехвалентных металлов, которые как известно проявляют хорошие сорбционные свойства по отношению к радионуклидам, ионам тяжелых и цветных металлов [4-6]. Увеличение концентрации фосфорной кислоты до 3 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> способствует понижению коэффициента распределения радионуклида <sup>57</sup>Со. Аналогично также влияет на коэффициент распределения радионуклида <sup>57</sup>Со увеличение температуры прокаливания бентонита до 600 - 800 °С после кислотной обработки 3 М

HCl. По видимому это связано с тем что при этих температурах происходит необратимая потеря гидратной и структурной воды, в результате чего уменьшается обменная емкость бентонита [7-8]. Таким образом оптимальная температура прокаливания бентонита составляет 400 °С.

Изучение кинетики адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Co на модифицированном бентоните путем последовательной обработки бентонита 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> показало, что полное равновесие достигается в течение 6 часов. При этом сорбируется 99,6 % радионуклида <sup>57</sup>Co. Следует отметить, что кинетика сорбции радионуклида <sup>57</sup>Co на образце модифицированного бентонита отличается высокой скоростью адсорбции. Количественная адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co уже достигается в течение первого часа. Коэффициент распределения <sup>57</sup>Co на бентоните, обработанным последовательно растворами кислот 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и прокаленным при 400 °С составляет 2144. При этом сорбируется 98,8 % радионуклида <sup>57</sup>Co.

Результаты влияния pH водной фазы на адсорбцию радионуклидов <sup>57</sup>Co приведены в таблице 2. Как видно из таблицы 2, сорбция радионуклида <sup>57</sup>Co на бентоните при pH 2-4 была немного выше и процент адсорбции составляет 12-20 %. При pH 6 сорбционная активность радионуклидов <sup>57</sup>Co резко увеличивается, а при pH 10 адсорбция немного снижается. Полученные данные согласуются с данными работы [9]. Процент адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Co в интервале pH 6-8 составляет 99,6-99,7%.

Таблица 2 - Адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co в зависимости от pH водного раствора

№ опыта	pH водной фазы	Коэффициент распределения, D	Процент адсорбции, %
1	1,0	1,2	4,6
2	2,0	3,4	12,0
3	4,0	6,2	20,0
4	6,0	6650	99,6
5	8,0	7500	99,7
6	10	2110	98,8

Изучение процента поглощения радионуклида <sup>57</sup>Co от навески бентонита показало, что процент поглощения кобальта сначала возрастает с увеличением навески бентонита и затем достигает некоторого предела, после которого добавка свежих порций бентонита не приводит к его дополнительному извлечению. Было найдено, что при навеске 20-25 мг бентонита на 5 мл раствора достигается наибольший коэффициент распределения кобальта. Процент адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Co составляет 99,5%. Этого количества достаточно, чтобы изготовить таблетку с диаметром 3 мм и высотой 1,5 мм.

Изучение адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Co на бентоните из растворов электролита NaCl с концентрацией 0,5-4,0 моль/л показало, что процент адсорбции составляет 94 %. Было интересным изучить адсорбционное поведение радионуклида <sup>57</sup>Co из растворов стирального порошка в связи с целью получения средства дезактивации различных поверхностей. Стиральный порошок «PUSH» имел следующий состав: силикат натрия, оптический отбеливатель, СМС, сульфат натрия, триполифосфат натрия, анионные ПАВ, эссенция. Полученные данные приведены в таблице 3.

Таблица 3 - Адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co без носителя на бентоните из раствора стирального порошка «Push»

№	Концентрация стирального порошка, г/л	pH	Время контакта, ч	Коэффициент распределения, D	Процент адсорбции, %
1	0,5	8	24	2153	98,9
2	1,0	9	1	1210	98,0
3	1,0	9	24	2285	98,9
4	5,0	10,5	1	1286	98,1
5	5,0	10,5	24	1697	98,5
6	10,0	11,0	1	1532	98,4
7	10,0	11,0	24	1661	98,5

Как видно из таблицы радионуклид кобальт-57 количественно адсорбируется на модифицированном бентоните из растворов стирального порошка. Процент адсорбции радионуклида <sup>57</sup>Co составляет 98-99%.

Для определения степени фиксации радионуклида кобальт-57 на бентоните были проведены эксперименты по его десорбции растворами 1 моль/л KCl и 0.1 моль/л HCl. При промывке образцов бентонита, содержащих радионуклид <sup>57</sup>Co раствором электролита 1 моль/л KCl наблюдается необратимая адсорбция на обоих образцах бентонитовой глины. Степень десорбции радионуклида кобальт-57 составляет 0,5 %. В случае промывки бентонита, обработанного 3 М HCl и прокаленного при 400 °С раствором 0.1 моль/л HCl степень десорбции радионуклида <sup>57</sup>Co составила 88%. Напротив, в случае промывки бентонита, предварительно обработанного бентонита растворами 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и последующего прокаливания бентонита при 400 °С степень десорбции радионуклида <sup>57</sup>Co составила 60%. Полученные данные по поведению радионуклида <sup>57</sup>Co подтверждают возможность образования новых фаз, таких как фосфаты трехвалентных металлов (Fe, Al) в кристаллической структуре бентонита после его последовательной обработки растворами 3 М HCl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и последующего прокаливания бентонита при 400 °С.

Результаты влияния высокотемпературного обжига бентонита после сорбции радионуклида  $^{57}\text{Co}$  на фиксацию радионуклида кобальта в структуре бентонита приведены в таблице 4. Как видно из таблицы 4 наилучшая фиксация радионуклида  $^{57}\text{Co}$  в структуре бентонита достигается после прокаливании бентонита при 600-800 °С.

Таблица 4 - Влияние высокотемпературного обжига бентонита на фиксацию радионуклида  $^{57}\text{Co}$

№	Температура, °С	Состав выщелачивающего раствора		
		H <sub>2</sub> O	0,01 М НСl	0,01 М HNO <sub>3</sub>
		Степень выщелачивания, %		
1	400	0,03	0,07	0,07
2	600	0,01	0,01	0,01
3	800	0,01	0,01	0,01

Таким образом, радионуклид  $^{57}\text{Co}$  эффективно сорбируется из водных растворов на модифицированном бентоните, предварительно обработанного путем последовательной обработки бентонита 3 М НСl и 1 М H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> и прокаленного при 400 °С. Установлено, что после предварительной сорбции радионуклида кобальт-57 на бентоните при рН 6-8 с последующей термообработкой при 600-800 °С можно получить надежную фиксацию радионуклида в структуре модифицированного бентонита. Установлено, что выщелачивание кобальта в раствор соляной кислоты с рН 2 составляет 0,01%.

#### **Литература**

1. Мясоедова Г.В., Никашина В.А. Сорбционные материалы для извлечения радионуклидов из водных сред // Рос. Хим. Ж. (Ж. Рос. Хим. Об-ва. им. Д.И. Менделеева). -2006. –Т. L, №5. С.55-63.
2. Финевич В.П., Аллерт Н.А., Карпова Т.Р., Дуплякин В.К. Композиционные наноматериалы на основе кислотнo-активированных монтмориллонитов // Рос. Хим. Ж. (Ж. Рос. Хим. Об-ва. им. Д.И. Менделеева). -2007. –Т. LI, №4. С.69-74.
3. Арипов Э.А. Природные минеральные сорбенты, их активирование и модифицирование. -Ташкент: Фан, 1970. -252 с.
4. Китикова Н.В., Шашкова И.Л., Ратько А.И. Синтез фосфатов кальция и магния из природных карбонатов и исследование их активности в процессах взаимодействия с ионами свинца (II) // Журнал прикладной химии.-2003.- Т.76, №3. С.383-388.
5. Ратько А.И., Шашкова И.Л., Мильвит Н.В., Лесникович А.И. Перспективы использования фосфатов кальция и магния для хемосорбционного извлечения ионов тяжелых и цветных металлов из раствора.// Доклады НАН Беларуси.-2005.-Т.49, №1. С.59-63.
6. Кулюхин С.А., Красавина Е.П., Мизина Л.В., Румер И.А., Танащук Н.В., Коновалова Н.А. Изучение сорбции радионуклидов иода, цезия и стронция на гидроксофосфатах щелочноземельных элементов из водной фазы.// Радиохимия, 2005. Т.47, №1. С.80-84.
7. Годимчук А.Ю., Ильин А.П. Исследование сорбционных процессов на природных и их термомодифицированных формах // Химия и технология воды.-2004. №3. С.287-298.
8. Султанов А.С., Попова Г.Л. Исследование процессов сорбции изотопов природными минеральными сорбентами // В кн.: Получение и выделение радиоактивных изотопов. -Ташкент: Фан,1983. С.139-141.
9. Вдовина Е.Д., Давыдов Ю.П. Состояние двухвалентного кобальта в растворе при микроконцентрациях // В кн.: Получение и выделение радиоактивных изотопов. -Ташкент: Фан,1983. С.248-250.

### **ВЛИЯНИЕ ИЗОТЕРМИЧЕСКОГО ОТЖИГА НА ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ К ЭТАНОЛУ ТОНКИХ ПЛЕНОК SnO<sub>2</sub> ЛЕГИРОВАННЫХ ФТОРОМ**

Е.А. Дмитриева

*Физико-технический институт, Алматы, Казахстан*

#### **Введение**

Пленки оксида олова имеют хорошее сцепление с поверхностью стекла, высокую электропроводность, прозрачность (80—90%), механическую прочность и химическую устойчивость. Эти свойства позволяют использовать их в качестве прозрачных проводящих покрытий. Стекла с таким покрытием используют для установки в кабинах самолетов и рубках кораблей, работающих в условиях сильного холода, поскольку, пропуская через пленку ток мощностью 1 Вт/см<sup>2</sup>, можно нагреть стекло до температуры 200—400 °С, что позволяет эффективно бороться с обледенением и запотеванием [1].

Пленки оксида олова также интенсивно применяются в качестве чувствительного элемента сенсоров для определения различных газов в атмосферном воздухе. Принцип действия этих сенсоров основан на модуляции приповерхностной области пространственного заряда и изменении электросопротивления кристаллов пленки при адсорбции молекул газов. Для того, чтобы физико-химические процессы протекали на поверхности чувствительного слоя достаточно быстро, обеспечивая время отклика на уровне нескольких секунд, сенсор разогревается до температуры 100-450 °С, что «активизирует» его поверхность. Применяются сенсоры экологическими службами, химическими предприятиями, нефтегазовой промышленностью – везде, где необходимо экспресс-определение концентраций таких газов как: пропан, метан, водород, пары этилового спирта.

Наиболее перспективными для разработки являются сенсоры на пары этанола. Поскольку этанол не только легко воспламеняемая жидкость, взрывоопасная концентрация которой составляет всего 6,8 г/м<sup>3</sup> [2], но и токсичное вещество. Он подавляет функции центральной нервной системы, ослабляя физические и психические возможности человека. Средняя смертельная концентрация этанола в воздухе рабочей зоны более 50000 мг/м<sup>3</sup>, предельно допустимая концентрация (ПДК) – 1000 мг/м<sup>3</sup> [3]. Регистрация концентраций, составляющих десятки доли ПДК, необходима не только для определения степени опьянения, но и в диагностике заболеваний, например, сахарного диабета [4].

Создание газочувствительных сенсоров и прозрачных проводящих покрытий требует нанесения оксидной пленки на различные подложки. Нанесение пленок на большие поверхности целесообразно проводить интенсивно развивающейся золь-гель технологией.

Синтезированные пленки оксида олова не всегда обладают необходимой электропроводностью, и поэтому для уменьшения электросопротивления и увеличения газовой чувствительности в пленки добавляют небольшие концентрации примесей. Например, ионы фтора, являющиеся донорами свободных носителей заряда. Тонкие пленки длительное время находятся в нагретом до 400 °С состоянии. Определение того, как долго пленка может сохранять свои полезные свойства в рабочем режиме – является актуальной научной и практической задачей.

В связи с вышесказанным, в данной работе была поставлена цель – провести анализ влияния изотермического отжига (400°С) на поверхностное сопротивление и адсорбционную чувствительность к парам этанола пленок оксида олова легированных ионами фтора.

#### **Эксперимент**

Тонкие пленки оксида олова были получены золь-гель методом. Растворы наносились на стеклянные подложки методом центрифугирования. Скорость центрифуги 3000 об/мин. Время центрифугирования составляло от 3 до 5 сек. Подложки с нанесенной пленкой высушивались с помощью инфракрасного излучателя при температуре 80 °С в течение 2-3 минут. Затем образец помещался в муфельную печь и отжигался при температуре 400 °С в течение 15 минут. После остывания наносили следующий слой. Всего было нанесено 15 слоев. Толщина пленок оценивалась по изменению массы образца. Конечная толщина составляла ~250 нм.

Для оценки влияния ионов фтора на поверхностное сопротивление и адсорбционную чувствительность были изготовлены три партии образцов.

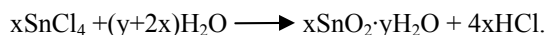
Первая партия изготавливалась из раствора безводного SnCl<sub>4</sub>. В качестве растворителя использовался 96% этанол. После созревания раствора, длившегося более шести часов, определялся pH, который составил 0,18. Повышенная кислотность указывает на высвобождение HCl в процессе растворения SnCl<sub>4</sub>.

При изготовлении второй партии в пленкообразующий раствор добавляли фторирующий агент – NH<sub>4</sub>F. Соотношение ионов олова к ионам фтора составляло 10/4. Кристаллы NH<sub>4</sub>F растворяли в течение 2-х часового помешивания со скоростью 140 об/мин и параллельного нагревания – 35°С на шейкере орбитального вращения ЛАБ-ПУ-01. Кислотность конечного раствора контролировалась рН-МЕТРОМ рН-150М и составляла рН = 1,80.

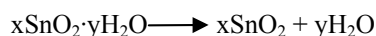
Поскольку после добавления фторида аммония кислотность раствора значительно уменьшилась и стала близкой к рН выпадения оловянной кислоты (рН=2,0)[5], была изготовлена третья партия образцов. Эту партию получили из раствора с рН= 1,80, но не содержащего ионы фтора. В качестве реагента, повышающего основные свойства раствора, был выбран NH<sub>4</sub>OH, поскольку при нагревании он распадается на легко удаляющиеся из пленки продукты (NH<sub>3</sub> + H<sub>2</sub>O). В созревший спиртовой раствор SnCl<sub>4</sub> по каплям при постоянном помешивании добавлялся 20% спиртовой раствор аммиака до достижения необходимого значения рН.

Конечная концентрация ионов олова в растворах всех партий составляла 0,13М.

SnCl<sub>4</sub>, взаимодействуя с водой, образует гелеобразную оловянную кислоту xSnO<sub>2</sub>·yH<sub>2</sub>O и легко удаляющуюся из пленки соляную кислоту HCl, в соответствии с реакцией:



Сушка и последующий отжиг пленок удаляют воду из оловянной кислоты.



Полученные таким образом пленки состояли из аморфного и/или поликристаллического SnO<sub>2</sub> и не содержали других оксидов олова [6].

Отжиг образцов проводился в муфельной печи SNOL 6.7/1300 литовского производства при температуре 400 °С в течение 3, 6 и 12 часов.

Поверхностное сопротивление пленок измеряли четырёхзондовым методом. Чувствительность к парам этанола определяли на экспериментальной установке, позволяющей проводить измерения в диапазоне температур от комнатной до 300°C.

**Результаты и обсуждение**

*Поверхностное сопротивление*

Поверхностное сопротивление тонких пленок SnO<sub>2</sub> определялось по 5 измерениям при доверительной вероятности P = 0,95 и коэффициенте Стьюдента  $t_{0,95,4} = 2,776$ . Результаты измерения представлены в таблице 1.

Таблица 1 Поверхностное сопротивление пленок SnO<sub>2</sub> после изотермического отжига

Состав пленкообразующего раствора	Поверхностное сопротивление пленок после отжига при 400 °С			
	15 минут, кОм·см	3 часа, кОм·см	6 часов, кОм·см	12 часов, кОм·см
SnCl <sub>4</sub> в этаноле	15,6±1,3	90±10	120±10	245±38
SnCl <sub>4</sub> в этаноле +NH <sub>4</sub> F	6,7±0,9	912±77	834±88	522±125
SnCl <sub>4</sub> в этаноле +NH <sub>4</sub> OH	15,4±1,6	63±8	150±15	1450±49

Как видно из таблицы 1, пленки, синтезированные из пленкообразующего раствора содержащего NH<sub>4</sub>F, обладают меньшим сопротивлением, чем пленки, полученные из растворов, не содержащих фторид аммония. Что подтверждает наличие в структуре пленок ионов фтора в качестве дополнительных источников свободных носителей заряда. Поверхностное сопротивление пленок, синтезированных из растворов, не содержащих добавок и с добавлением NH<sub>4</sub>OH, отличается в пределах точности проведенных измерений. Следовательно, pH пленкообразующего раствора не влияет на поверхностное сопротивление синтезированных пленок SnO<sub>2</sub>.

Трехчасовой отжиг при 400 °С приводит к увеличению поверхностного сопротивления пленок легированных фтором на два порядка. Поверхностное сопротивление пленок SnO<sub>2</sub> без фтора также увеличилось, но не столь значительно. Увеличение сопротивления пленок легированных фтором, по-видимому, связано с удалением фтора из состава пленок и образованием большого количества дефектов. Дальнейший отжиг приводит к уменьшению поверхностного сопротивления, что указывает на снижение концентрации дефектов в данных пленках.

С увеличением длительности отжига поверхностное сопротивление пленок, не содержащих ионов фтора, увеличивается. Также увеличивается разброс значений поверхностного сопротивления, то есть увеличивается неоднородность пленок по структуре, появляются микротрещины и другие дефекты.

*Чувствительность пленок к парам этанола*

Исследования синтезированных тонких пленок SnO<sub>2</sub> на чувствительность к парам этанола проводились в два этапа. На первом этапе определялась температура, при которой достигается максимальная чувствительность исследуемой пленки к парам этанола. На втором этапе при найденной температуре измерялось изменение сопротивления пленки при воздействии различных концентраций паров этанола.

Чувствительность пленок диоксида олова определялась как отношение:

$$\gamma = \frac{R_0}{R_2},$$

где R<sub>0</sub> – сопротивление газочувствительного слоя в чистом воздухе; R<sub>2</sub> – сопротивление газочувствительного слоя в присутствии паров этанола определенной концентрации.

На рисунке 1 представлена температурная зависимость чувствительности тонких пленок SnO<sub>2</sub> к парам этанола (1 мг/л).

Из рисунка 1 видно, что максимум чувствительности к парам этанола с увеличением длительности отжига пленок сдвигается с 230 °С, при отжиге 15 минут, до 260°C, при отжиге 12 часов. Из рисунка также видно, что с увеличением длительности отжига чувствительность к парам этанола концентрацией 1 мг/л пленок синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле без добавок меняется (рисунок 1а). Наблюдается значительный рост чувствительности полученных пленок после отжига при 400 °С в течение 3 и 6 часов (кривая 2 и 3 рисунок 1а). После отжига в течение 12 часов (кривая 4 рисунок 1а) отмечается уменьшение чувствительности, что может быть вызвано существенным ростом размеров кристаллитов с ~6,5 до ~11 нм [7].

Для пленок синтезированных из растворов тетраоксида олова в этаноле с добавлением NH<sub>4</sub>F и NH<sub>4</sub>OH максимум чувствительности к парам этанола также сдвигается на 30 °С в область более высоких температур. Отжиг пленок в течение 3 часов приводит к увеличению чувствительности, но не столь существенному как у пленок полученных из растворов без добавок. Следует отметить, что чувствительность этих пленок к парам этанола концентрацией 1 мг/л при температуре подложки 230-240 °С с дальнейшим увеличением длительности отжига изменяется в пределах точности проведенных измерений.

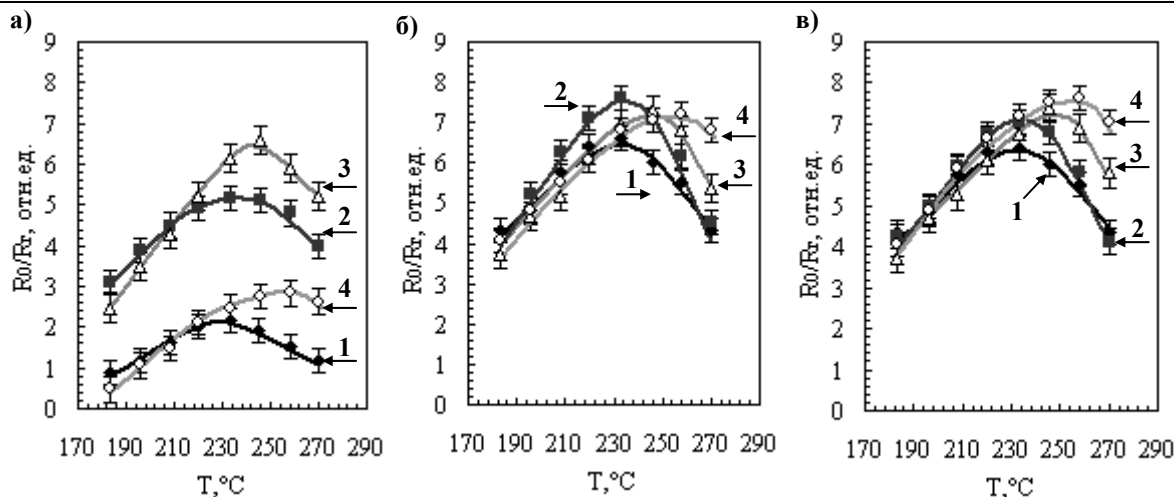
Время отклика пленок к парам этанола определялось как отношение:

$$t_{отклика} = t_{R_0-R_2} \cdot 90\%,$$

где  $t_{R_0-R_2}$  - время, за которое сопротивление пленок достигает минимального значения при напуске паров этанола.

В таблице 2 представлены значения времени отклика тонких пленок SnO<sub>2</sub> на присутствие паров этанола концентрацией 1 мг/л.





1 – чувствительность пленки после осаждения; 2 – после 3 часов отжига; 3 - после 6 часов отжига; 4 - после 12 часов отжига.

(а) температурная зависимость чувствительности к парам этанола (1 мг/л) тонких пленок SnO<sub>2</sub> синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле без добавок; (б) пленок синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле с добавлением NH<sub>4</sub>F; (в) пленок синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле с добавлением NH<sub>4</sub>OH.

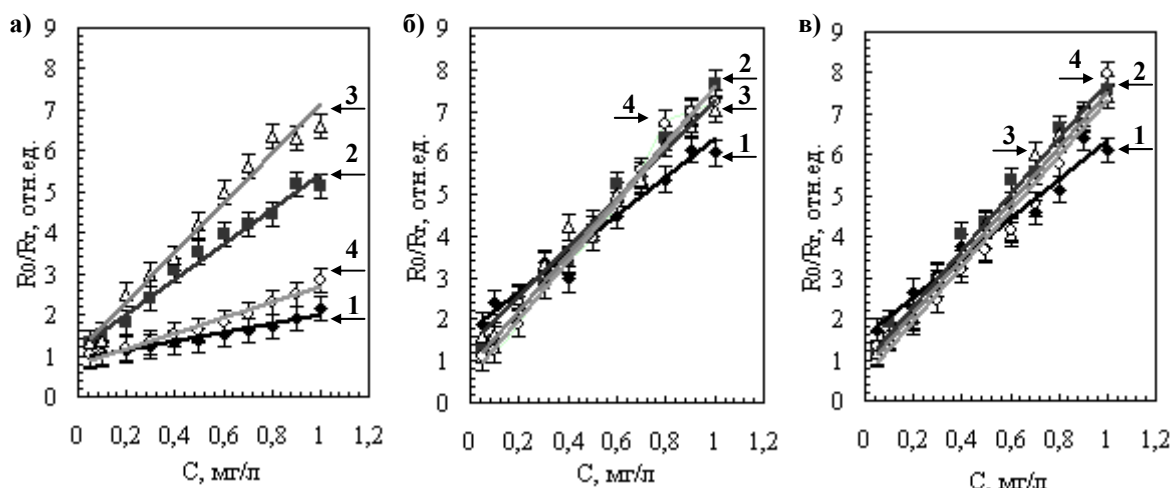
Рисунок 1 - Температурная зависимость чувствительности к парам этанола (1 мг/л) тонких пленок SnO<sub>2</sub>

Таблица 2 Время отклика пленок SnO<sub>2</sub> на присутствие паров этанола концентрацией 1 мг/л

Состав пленкообразующего раствора	Время отклика пленок после отжига			
	15 минут	3 часа	6 часов	12 часов
SnCl <sub>4</sub> в этаноле	<4с	~2с	<2с	~1с
SnCl <sub>4</sub> в этаноле +NH <sub>4</sub> F	<2с	~1с	~2с	<2с
SnCl <sub>4</sub> в этаноле +NH <sub>4</sub> OH	<2с	~2с	~1с	<2с

По данным таблицы 2 видно, что для пленок SnO<sub>2</sub>, полученных из растворов без добавок, с увеличением длительности отжига происходит уменьшение времени отклика, что связано с образованием микротрещин, приводящих к увеличению поверхности, на которой происходит взаимодействие с анализируемым газом. Время отклика пленок, синтезированных из растворов с добавлением NH<sub>4</sub>F и NH<sub>4</sub>OH, с увеличением длительности отжига изменяется незначительно и колеблется в пределах 1-2 секунд.

На рисунке 2 приведена зависимость чувствительности пленок SnO<sub>2</sub> от концентрации паров этанола.



1 – чувствительность пленки после осаждения; 2 – после 3 часов отжига; 3 - после 6 часов отжига; 4 - после 12 часов отжига.

(а) чувствительность тонких пленок SnO<sub>2</sub> синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле без добавок; (б) пленок синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле с добавлением NH<sub>4</sub>F; (в) пленок синтезированных из раствора SnCl<sub>4</sub> в этаноле с добавлением NH<sub>4</sub>OH.

Рисунок 2 - Зависимость чувствительности пленок SnO<sub>2</sub> от концентрации паров этанола

Из рисунка 2 видно, что для пленок синтезированных из раствора  $\text{SnCl}_4$  в этаноле без добавок (рисунок 2а) наблюдается увеличение чувствительности к парам этанола с возрастанием длительности отжига образцов до 6 часов и уменьшение при отжиге от 6 до 12 часов.

Пленки, полученные из растворов с добавлением  $\text{NH}_4\text{F}$  и  $\text{NH}_4\text{OH}$ , сразу после синтеза обладают высокой чувствительностью к парам этанола. Трехчасовой отжиг приводит к небольшому увеличению чувствительности, а дальнейший отжиг не приводит к заметным изменениям чувствительности. Причем чувствительность этих пленок различается в пределах точности проведенных измерений. Следовательно, увеличение адсорбционной чувствительности к парам этанола связано с изменением водородного показателя пленкообразующего раствора, приводящего к образованию более пористой структуры пленки.

#### **Заключение**

Проведен сравнительный анализ влияния изотермического отжига ( $400^\circ\text{C}$ ) на поверхностное сопротивление и адсорбционную чувствительность к парам этанола пленок оксида олова легированных ионами фтора и пленок полученных без добавления фторирующего агента.

Отжиг пленок легированных фтором приводит к увеличению поверхностного сопротивления на два порядка, что связано с удалением фтора из состава пленок и образованием большого количества дефектов. Дальнейший отжиг приводит к уменьшению поверхностного сопротивления, что, по-видимому, связано с уменьшением дефектов.

Показано, что изменение водородного показателя пленкообразующего раствора приводит к образованию пленок с термостабильной чувствительностью к парам этанола.

#### **Благодарность**

Автор выражает благодарность заведующей лабораторией электронно-парамагнитного резонанса и спектроскопии им. Ю.В. Горелкинского Физико-Технического института кандидату физико-математических наук Мухамедшиной Дание Махмудовне за любезное предоставление материальной и технической базы.

#### **Литература**

1. Производство закаленного стекла с электропроводящим покрытием. Источник <http://alum-prof.ru>
2. Корольченко А.Я., Корольченко Д.А. Пожаровзрывоопасность веществ и материалов и средства их тушения. - Москва. «Химия» 2004г Справочник в 2-х томах
3. ГОСТ 12.1.007-76 Система стандартов безопасности труда Вредные вещества классификация и общие требования безопасности
4. Щербакова Н.В., Начаров П.В., Янов Ю.К. Анализ газового состава выдыхаемого воздуха в диагностике заболеваний//Российская оториноларингология. – 2005.-Т.17, №4.- С126-132.
5. Суйковская Н.В. Химические методы получения тонких прозрачных пленок. – Ленинград. Химия, 1971, 200с.
6. Дмитриева Е.А., Мухамедшина Д.М., Мить К.А., Бейсенханов Н.Б. Изготовление и физические свойства наноразмерных пленок оксида олова //Доклады II Международной научно-практической конференции молодых ученых ЖАС ҒАЛЫМ – 2007. – Тараз, 2007. – Т. 10. – С. 58-65.
7. Мухамедшина Д.М., Дмитриева Е.А., Мить К.А., Бейсенханов Н.Б. Влияние термической и плазменной обработок на свойства тонких пленок  $\text{SnO}_2$  синтезированных золь-гель методом //Труды VI Международной научной конференции Радиационно-термические эффекты и процессы в неорганических материалах. – Томск: Изд. ТПУ, 2008. – С. 698-706.

## **ВОЗМОЖНОСТЬ ПРИМЕНЕНИЯ ТЕПЛОВИЗИОННОЙ ДИАГНОСТИКИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ГЕОМЕТРИЧЕСКОГО ПРОФИЛЯ И ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ИМПУЛЬСНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА**

Сазонов Р.В., Пушкарев А.И., Пономарев Д.В., Холодная Г.Е., Исакова Ю.И.  
Национальный исследовательский Томский политехнический университет  
634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, Тел. 8 (3822) 418540, E-mail: galina\_holodnaya@mail.ru

*В работе представлены исследования возможности применения тепловизионной диагностики для измерения некоторых параметров пучка при различных режимах работы импульсного электронного ускорителя ТЭУ-500. Разработана методика оперативного контроля геометрического профиля, энергетического спектра импульсного электронного пучка гигаватной мощности с применением тепловизора Fluke Ti10.*

#### **Введение**

Широкое применение импульсных электронных пучков для накачки газовых лазеров, инициирования неравновесных плазмохимических процессов требует формирования электронных пучков большой площади (более  $10\text{ см}^2$ ) с высокой однородностью плотности энергии по сечению. Для измерения распределения энергии пучка в поперечном сечении обычно используют секционированный калориметр. Для обеспечения пространственного разрешения профиля энергии электронного пучка около 1 мм при площади пучка более  $20\text{ см}^2$  требуется сложная конструкция калориметра, и процесс измерения занимает много времени. В работе [1] для измерения распределения энергии импульсного электронного пучка в поперечном сечении предложена радиационно-акустическая диагностика.

Она основана на регистрации акустических волн, возникающих в стержне при диссипации энергии электронного пучка. Выполненные исследования показали, что разрешающая способность такой диагностики при исследовании распределения энергии импульсного электронного пучка (450 кВ, 6 кА, 50 нс) в поперечном сечении хуже 5 мм. В работе [2-4] представлена методика измерения распределения плотности энергии пучка в поперечном сечении с помощью дозиметрической пленки ПОР (5...50 кГр). Разработанная методика позволяет измерять неоднородность плотности энергии импульсного электронного пучка с пространственным разрешением выше 1 мм при измерении абсолютных значений плотности энергии. Но методика с использованием радиочувствительных материалов требует дорогостоящих расходных материалов и много времени на обработку.

Целью представленной работы является разработка методики оперативного контроля параметров импульсного электронного пучка гигаватной мощности.

#### Экспериментальная часть

Эксперименты проводились на импульсном электронном ускорителе ТЭУ-500 с параметрами: ускоряющее напряжение 350-450 кВ, длительность импульса на полувысоте 100 нс, суммарная кинетическая энергия электронов в импульсе до 250 Дж [4]. Для измерения распределения плотности энергии импульсного электронного пучка по сечению и энергетического спектра электронов в пучке использовали измерение теплового отпечатка электронного пучка в материале с низкой объемной плотностью и низкой теплопроводностью. Эксперименты выполнены с использованием пенополистирола (СПб-25) и тепловизора Fluke Ti10. Схема измерения показана на рисунке 1.

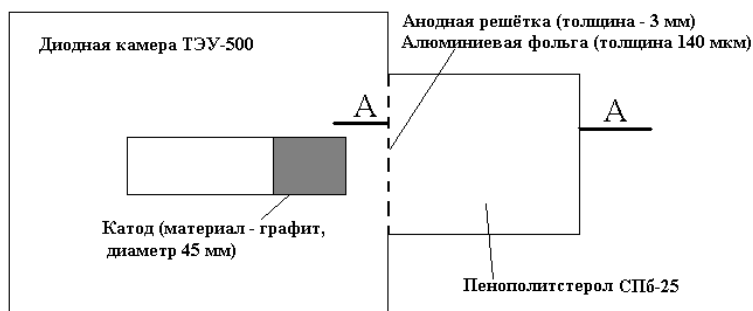


Рисунок 1 – Схема эксперимента (А\_А – сечение в пенополистироле по которому наблюдали поведение пучка)

На рисунке 2 (а) приведен тепловой отпечаток импульсного электронного пучка в пенополистироле толщиной 10 мм. В слое толщиной 10 мм происходит поглощение электронов с энергией до 150 кэВ и нагрев пенополистирола.

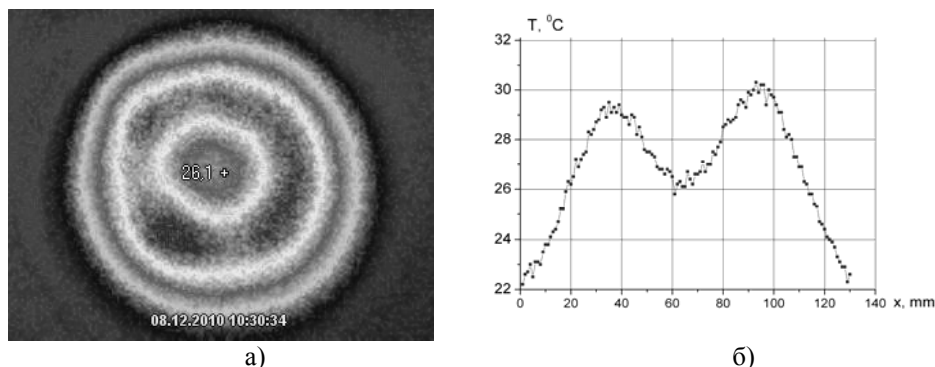


Рисунок 2 – а) тепловой отпечаток импульсного электронного пучка б) распределение температуры поперек теплового отпечатка

На рисунке 2 б – показано распределение температуры в горизонтальном сечении теплового отпечатка (см. рис.2 а).

Для измерения энергетического спектра электронов была изготовлена пенополистироловая мишень разъемная в диаметральной плоскости для снятия теплового отпечатка (рисунок 3). После облучения мишени импульсным пучком снимали тепловое изображение на тепловизор.

Типичное распределение температуры показано на Рисунке 4. По данным распределения температуры по глубине пенополистирола можно рассчитать удельное энерговыделение электронного пучка. Размер образца 90 мм × 55 мм. Направление движения электронов – снизу вверх. При плотности пенополистирола 0,02 г/см<sup>3</sup> и теплоемкости 1,26 Дж/(г·град) распределение удельного энерговыделения по глубине показано на Рисунке 5.

Для исследования распределения энерговыделения электронного пучка по глубине образца выбрали 3 различных катода и режима работы ускорителя. Далее следили за особенностью поведения пучка в 3-х направлениях:

Размер образца 95мм × 50 мм. Направление движения электронов – снизу вверх.

На рисунке 7 показано распределение температуры по глубине образца (1 импульс, T1, T2, T3 – соответствуют 3 сечениям показанным на рисунке 6).



Рисунок 3 – Пенополистироловая мишень

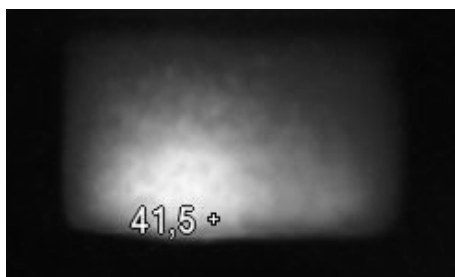


Рисунок 4 – Распределение температуры по глубине образца (пенополистирол), 5 импульсов

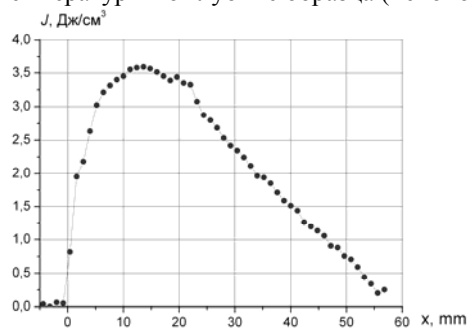


Рисунок 5 – Распределение энерговыделения электронного пучка по глубине образца

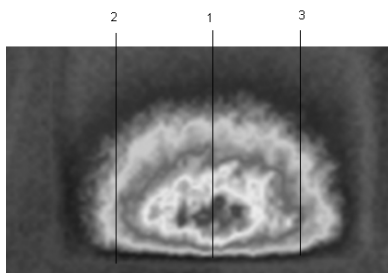


Рисунок 6 – Распределение температуры по глубине образца (пенополистирол), 1 импульс

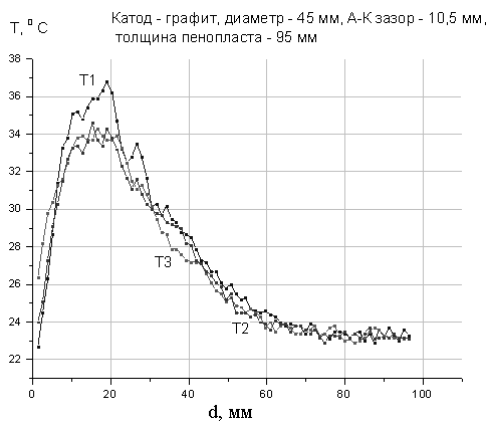


Рисунок 7 – Распределение температуры по глубине образца

По данным распределения температуры по глубине пенополистирола можно рассчитать удельное энерговыделение электронного пучка. При плотности пенополистирола  $0,02 \text{ г/см}^3$  и теплоемкости  $1,65 \text{ Дж/(г·град)}$  распределение удельного энерговыделения по глубине показано на рисунке 8 (J1, J2, J3 – соответствуют 3 сечениям, показанных на рисунке 6).

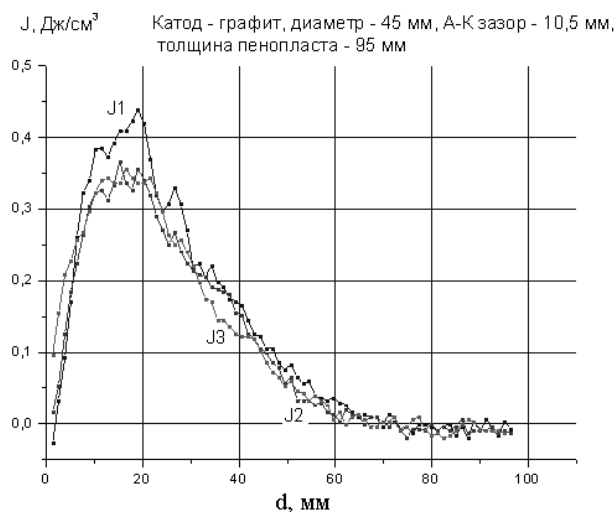
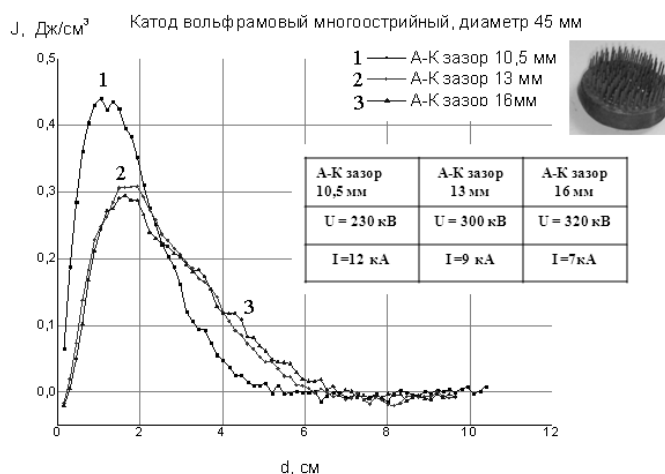
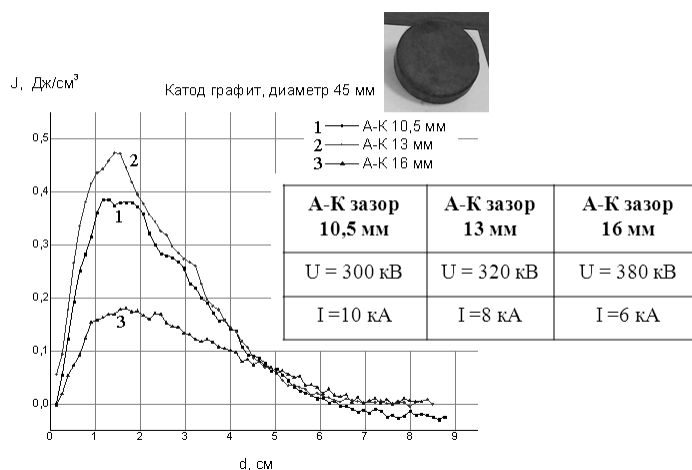


Рисунок 8 – Распределение энерговыделения электронного пучка по глубине образца

Из рисунка 8 видно, что распределение энерговыделения электронного пучка по глубине образца однородно и соответствует картине, которую наблюдаем на тепловизоре.

Теперь приведем результаты исследований для следующих катодов и анод-катодных расстояний: катод – графитовый, вольфрамовый многоострый и катод из углеродной ткани; анод-катодные расстояния:  $d = 10,5; 13; 16 \text{ см}$ . На рисунке 9 приведено распределение энерговыделения электронного пучка по глубине образца.



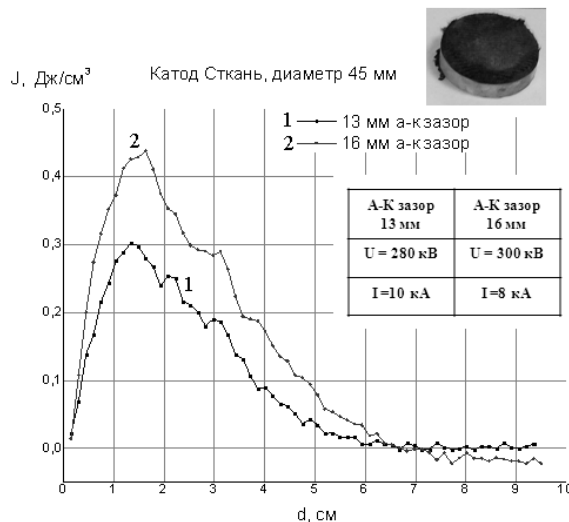


Рисунок 9 – Распределение энерговыделения электронного пучка

Из рисунка 9 видно, что для катода из графита характерно наличие высокоэнергетических и низкоэнергетических электронов для анод-катодного расстояния 13 мм, на этом расстоянии значение энерговыделения электронного пучка максимально и пробег электронов составляет около 7 см, что не характерно для одного другого катода (многоострийного вольфрамового и катода из С-ткани). Интересно отметить, что для катода из С-ткани и многоострийного вольфрамового катода значение энерговыделения электронного пучка не превышает  $0,4 \text{ Дж/см}^3$ , а максимальный пробег электронов в этих случаях не превышает 5-6 см. Для катода из С-ткани характерно наличие высокоэнергетических электронов, об этом можно судить по «размытому хвосту» наблюдаемому на графике. А для многоострийного вольфрамового катода наоборот наличие низкоэнергетических электронов, как видно из особенности самого рисунка 9, т.е. зависимость значения энерговыделения электронного пучка от глубины пробега пучка имеет небольшую площадь по графику. Таким образом, получается, что для наиболее эффективной работы импульсного электронного ускорителя перспективно использовать катод из графита и при анод-катодном расстоянии 13 см.

#### Заключение

Выполненные эксперименты по исследованию возможности применения тепловизионной диагностики для измерения некоторых параметров пучка при различных режимах работы импульсного электронного ускорителя ТЭУ-500 показали, что разработанная методика позволяет определить энергетический спектр электронов, генерируемых с разных точек катода, с пространственным разрешением 1-2 мм. Пространственное разрешение тепловизионной диагностики составляет 0,9 мм, чувствительность тепловизора Fluke Ti10 обеспечивает регистрацию теплового отпечатка за один импульс при плотности тока  $0,1-0,4 \text{ кА/см}^2$ .

*Работа выполнена при финансовой поддержке Федеральной целевой программы (ГК П842).*

#### Литература

- 1 Ремнев Г.Е., Пушкарев А.И., Ежов В.В. Радиационно-акустическая диагностика профиля импульсного электронного пучка // Физика импульсных разрядов в конденсированных средах: Матер. 11 Междунар. научной школы-семинара. – Николаев, август 2003. – Николаев, 2003. – С. 77–78.
- 2 Гончаров Д.В., Ежов В.В., Пушкарев А.И., Ремнев Г.Е. Исследование распределения плотности энергии сильноточного импульсного электронного пучка // Известия Томского политех. универ. – 2005. – Т. 308, №6. – С. 76 – 80.
- 3 Ремнев Г.Е., Фурман Э.Г., Пушкарев А.И., Карпузов С.Б., Кондратьев Н.А., Гончаров Д.В. Импульсный сильноточный ускоритель с согласующим трансформатором // Приборы и техника эксперимента. – 2004. – № 3. – С. 130–134.
- 4 Холодная Г.Е., Сазонов Р.В. Исследование распределения плотности энергии импульсного электронного пучка с помощью дозиметрических плёнок // Современные техника и технологии: Сборник трудов XV Международная научно-практическая конференция студентов и молодых учёных «Современные техника и технологии». – 2009. – Т. 3 – С. 124 – 126.

П.В. Чакров, Е.Т. Чакрова, З.В. Медведева, В.И. Банных, А.Н. Гурин, Н.В. Глушенко  
ДГП ИЯФ НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Среди большого числа  $\beta^-$  - излучающих изотопов, используемых в радионуклидной терапии,  $^{177}\text{Lu}$  занимает особое место благодаря своим ядерно-физическим характеристикам. Так, максимальная энергия  $\beta^-$ -частиц 496 кэВ обеспечивает оптимальную глубину проникновения в опухоли малых размеров, наличие низкоэнергетического гамма-излучения позволяет оценить накопление радиофармпрепаратов (РФП) и динамику лечения, а сравнительно долгий период полураспада (6,7 дня) позволяет транспортировать РФП на большие расстояния.

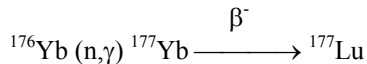
Процесс получения из иттербия безносительного  $^{177}\text{Lu}$  в виде РФП, состоит из следующих основных технологических стадий:

1. Облучение иттербия;
2. Получение амальгамы натрия;
3. Цементация иттербия амальгамой натрия;
4. Очистка раствора  $^{177}\text{Lu}$ ;
5. Получение РФП с  $^{177}\text{Lu}$  ( $^{177}\text{Lu}$ -EDTMP,  $^{177}\text{Lu}$ -DOTA-TATE)

В настоящей работе изучались 2 стадии: получение амальгамы натрия и цементация иттербия амальгамой натрия. Целью исследования было определение оптимальных параметров проведения данных процессов.

#### **Методика эксперимента**

Для проведения исследований ампулу с хлоридом иттербия природного изотопного состава, облучали на реакторе ВВР-К потоком нейтронов  $1,4 \cdot 10^{14} \text{ н} \cdot \text{с}^{-1} \cdot \text{см}^{-2}$  в течение 200 часов:



Облученный образец выдерживали для накопления лютеция и растворяли в соляной кислоте. Концентрация иттербия 0,025 мг/мл.

Амальгаму натрия готовили электролизом 5 М раствора NaOH с использованием в качестве катода металлической ртути. Анодом служила платиновая пластинка.

Экспериментально были определены оптимальные электрохимические параметры получения амальгамы натрия определенной концентрации. Плотность тока 0,5-1,0 А, напряжение 12 В. Перемешивание проводилось барботированием воздуха через электролит.

Полученную амальгаму промывали дистиллированной водой и высушивали фильтровальной бумагой.

Концентрацию натрия в амальгаме определяли методом титрования.

Процесс цементации иттербия амальгамой натрия проводили по методикам А.Ф. Новгородова с сотр. [1-3].

В рабочий раствор добавляли раствор облученного иттербия, ацетат натрия и создавали pH 3,5.

Процесс цементации проходили следующим образом: во флакон с рабочим раствором приливали точное количество амальгамы натрия и перемешивали флакон в течение 5 минут.

Коэффициент разделения определяли по уменьшению активности иттербия-175 в рабочем растворе до и после проведения процесса цементации.

#### **Результаты экспериментов**

Были определены оптимальные параметры получения амальгамы натрия определенной концентрации, которая в дальнейшем используется для отделения больших количеств иттербия от лютеция методом цементации.

Зависимость концентрации натрия в амальгаме от времени электролиза. Результаты опытов представлены на рис.1. Как видно из рисунка, линейная зависимость концентрации натрия в амальгаме от времени проведения электролиза сохраняется до концентрации натрия около 0,65 вес. %, до этого значения амальгама гомогенна. При концентрациях натрия выше 0,65 вес. % в амальгаме отчетливо видны разные фазы амальгамы: вязкая фаза, жидкая (текучая) фаза и смешанная. Определяли концентрацию натрия во всех видимых фазах, разница между самой вязкой фазой и самой жидкой фазой около 0,25 вес. % Na. На рис.1 представлены результаты определения натрия в жидкой фазе амальгамы. Для дальнейшей работы использовали гомогенную амальгаму с концентрацией до 0,65 вес. % Na.

Условия: напряжение -12 В, плотность тока - 1,0 А. Отношение объема электролита к объему ртути 6:1.

Изучение влияния объема электролита на концентрацию натрия в амальгаме. Данный опыт проводился для определения оптимальных размеров электрохимической ячейки.

На рис. 2 представлены результаты. Как видно, увеличение объема электролита не оказывает существенного влияния на концентрацию натрия в амальгаме. Для удобства проведения электролиза в электролитической ячейке брали объем электролита -60 мл.

Влияние промывки амальгамы водой на концентрацию натрия в амальгаме.

После окончания электролиза амальгаму нужно отмыть от концентрированного раствора электролита - 5М NaOH, при этом не разрушив амальгаму. Как известно из литературы [4], амальгама натрия разлагается водой при определенных условиях и промывать ее рекомендуют водой и спиртом. После экспериментов с промывкой амальгамы водой, этиловым, бутиловым и изопропиловым спиртом, мы остановились на промывке только дистиллированной водой. Результаты опытов представлены на рис.3. Как видно на рисунке, амальгама не разрушается при промывании



порциями холодной воды и тщательном высушивании фильтровальной бумагой. Для промывки 10 мл готовой амальгамы мы использовали 50 мл дистиллированной воды.

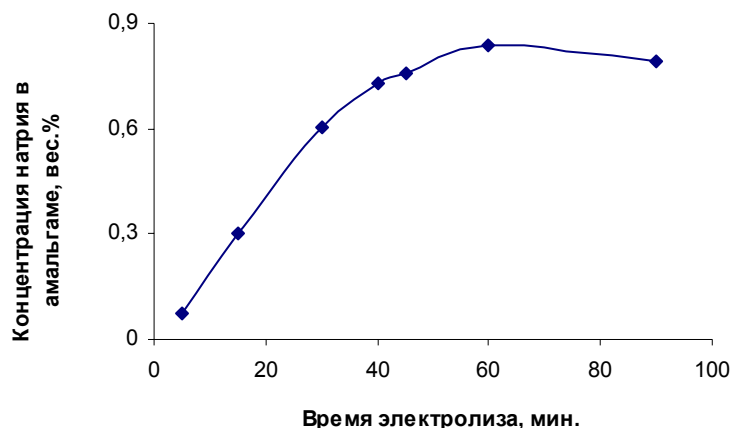
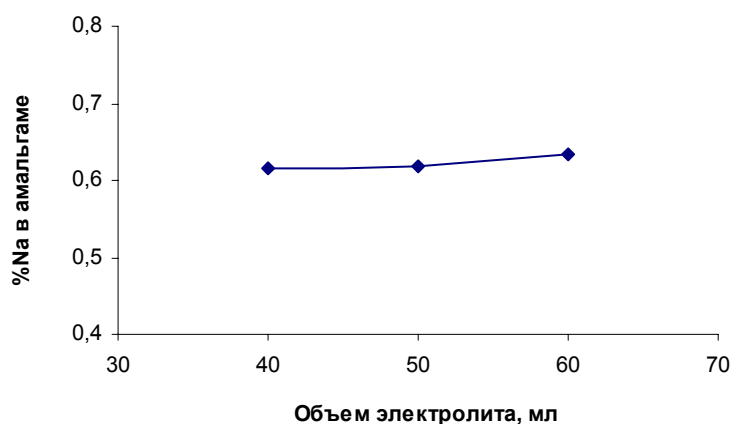
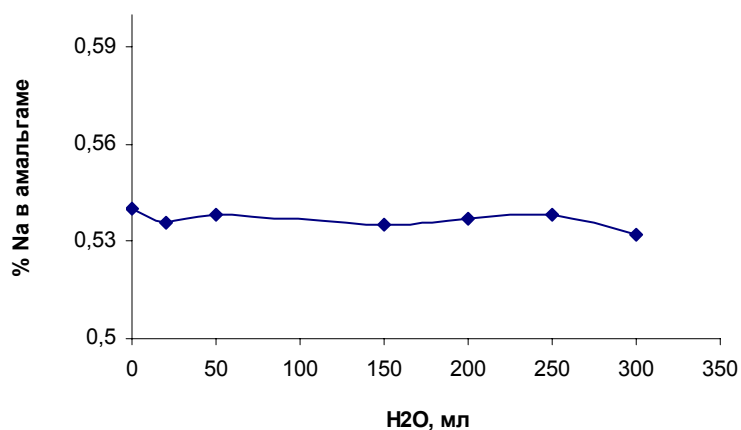


Рис. 1. Зависимость концентрации натрия в амальгаме от времени электролиза.



Условия: напряжение -12 В, плотность тока- 1,0 А.

Рис. 2. Влияние объема электролита на концентрацию Na в амальгаме.

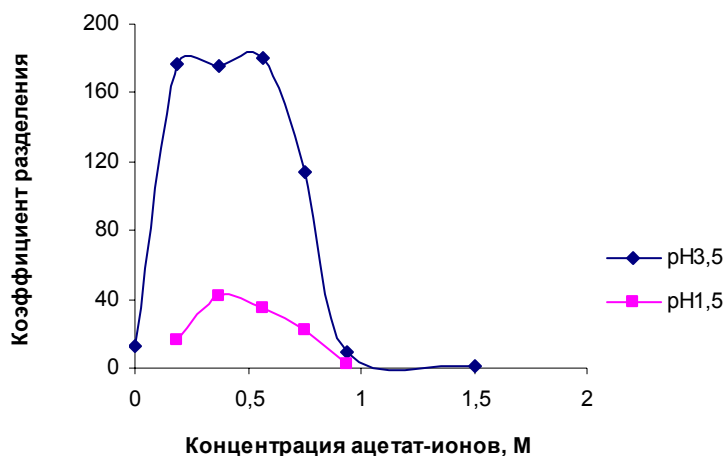


Условия опытов: напряжение -12 В, плотность тока- 1,0А. Отношение объема электролита к объему ртути 6:1.

Рис. 3. Влияние промывки амальгамы водой на концентрацию Na в амальгаме.

В работе изучался процесс цементации иттербия амальгамой натрия из ацетатных растворов для определения некоторых оптимальных параметров данного процесса.

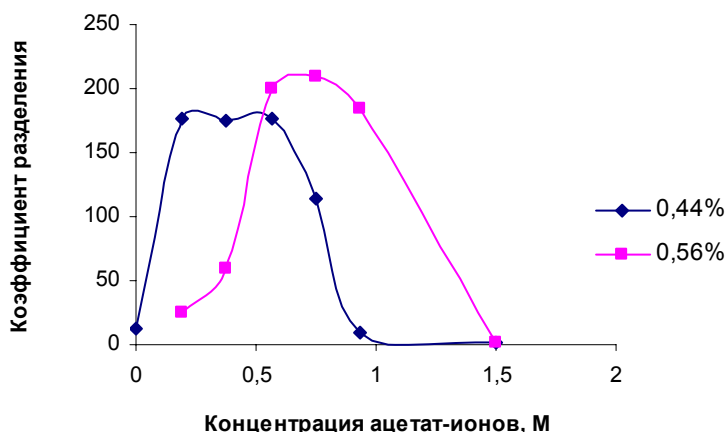
Изучение зависимости коэффициента разделения от концентрации ацетат-ионов при различном pH рабочего раствора. Так как цементация иттербия амальгамой натрия происходит в присутствии ацетат-ионов, в работе определен диапазон концентраций ацетат-ионов, при которой иттербий максимально переходит в амальгаму. Для амальгамы с концентрацией Na- 0,44 вес. % - этот диапазон равен 0,19М-0,56 М. На рис. 4 видно, что при pH 1,5 цементация в аналогичных условиях происходит незначительно, это связано с разрушением амальгамы натрия в кислой среде.



Условия опыта: концентрация натрия в амальгаме -0,44 вес.%, время цементации – 5 мин.;  
концентрация иттербия в рабочем растворе – 0,42 мкг/мл.

Рис. 4. Зависимость коэффициента разделения от концентрации ацетат-ионов при различном pH рабочего раствора.

Изучение зависимости коэффициента разделения от концентрации ацетат-ионов при различной концентрации натрия в амальгаме. На рис.5 представлены зависимости коэффициента разделения от концентрации ацетат-ионов для амальгамы с концентрацией натрия – 0,44 и 0,56 вес.%. Как видно из рисунка, диапазон концентраций ацетат-ионов, при которой цементация иттербия происходит в большей степени, для данных концентраций натрия в амальгаме различен, при 0,44 вес. % Na- 0,19М-0,56 М, при 0,56 вес. % Na- 0,56М – 0,95М. Степень цементации (коэффициент разделения) при 0,56 вес. % Na выше, около 200, при 0,44 вес. % Na – около 175.



Условия опыта: pH рабочего раствора 3,5; время цементации – 5 мин.;  
концентрация иттербия в рабочем растворе – 0,42 мкг/мл.

Рис. 5. Зависимость коэффициента разделения от концентрации ацетат-ионов при различной концентрации Na в амальгаме.

### Выводы

1. Отработана технология получения амальгамы натрия.
2. Определены оптимальные параметры проведения цементации ионов иттербия амальгамой натрия в ацетатной среде: pH рабочего раствора 3,5, концентрация натрия в амальгаме 0,5-0,57 вес. %, концентрация ацетат-ионов в рабочем растворе в пределах 0,56М-0,95 М.
3. Коэффициент разделения за одну цементацию составляет более 200.

### Список литературы:

1. Nikolai A. Lebedev, Alexander F. Novgorodov, Riscard Misiak, Jorg Brockmann and Frank Rosch “Radiochemical separation of no-carrier-added  $^{177}\text{Lu}$  as produced via the  $^{176}\text{Yb} (n,\gamma) ^{177}\text{Yb} \longrightarrow ^{177}\text{Lu}$  process”, Applied Radiation and Isotopes, V. 53, Issue 3, (2000), p. 421-425.
2. А.Ф. Новгородов, В.А. Халкин и Ван Чуан-Пэнь “Цементация амальгамой натрия микроколичеств радиоактивных изотопов редкоземельных элементов в состоянии, свободном от носителя, из ацетатных растворов”, Радиохимия, т. 8, вып. 3, 1966, с. 347-352.
3. А.Ф. Новгородов и В.А. Халкин “Применение амальгамы натрия для быстрых разделений радиоактивных изотопов РЗЭ без носителя”, Радиохимия, т. 10, вып. 5, 1968, с. 554-557.
4. А.С. Мусина, А.А. Ланге, С.П. Бухман “Исследование устойчивости амальгамы натрия в некоторых спиртах”, Известия АН КазССР, серия химическая, № 2, 1980, с. 21-24.

Ермаханов<sup>1</sup> М.Е., Битенбаев<sup>1</sup> М.И., Жанабаев<sup>2</sup> З.Ж., Поляков<sup>1</sup> А.И.

1-Физико-технический институт научно-технологического холдинга «Парасат»,

2-КазНУ им. аль-Фараби.

Если характерные размеры спиновых структур в кристаллических материалах оказываются сравнимыми с масштабом когерентности электронных волновых функций исследуемых кристаллов, то в физических свойствах таких структур начинают проявляться квантово-размерные эффекты [1-4]. Суть этих эффектов заключается в том, что физические свойства электромагнитных структур с размерами порядка 10 или менее нанометров будут зависеть уже от размеров и от формы этих структур. Причем квантовый эффект может реализовываться в структурах и с пониженной размерностью (например, молекулярные фрагменты, пленки и т.д.) [1-3]. При этом существенному изменению подвергается сама идеология и подходы по описанию этих эффектов, выдвигая на первый план свойства отдельных квантовых состояний. Поэтому исследование спиновых структур с линейными размерами порядка  $10^{-8} \div 10^{-10}$  нанометров (область когерентности электронных волновых функций) принято считать самостоятельным разделом нанотехнологий. [3-5].

Поскольку область когерентности квантовых, спиновых состояний можно формировать, варьируя температуру или концентрацию примесных атомов, то в настоящее время эти вопросы всплывают как наиболее актуальные при решении задач получения структур уже не только нано, но и ангстремного размерного диапазонов.

В указанных выше публикациях показано, что скорость передачи сигнала спиновой поляризации определяется скоростью изменения спинов в пространстве, т.е. доли наносекунд. Поэтому скорость передачи поляризации при использовании неравновесных спиновых состояний может на несколько порядков превышать аналогичные характеристики устройств, основанных на использовании традиционной электронной проводимости.

В данном сообщении мы остановимся на одной из основных задач спинтроники – на оценках долговременной стабильности магнитных характеристик спиновых кластеров ангстремного размера в влиянии температуры и примесных атомов на кинетику формирования а также квантово-размерных структур указанного выше размера в образцах поликристаллического алюминия.

На рисунках 1 и 2 приведены данные по температурной зависимости спада неравновесной спиновой поляризации:  $q(t) \sim f(T^0)$  в образцах технического алюминия.

$q(t)$

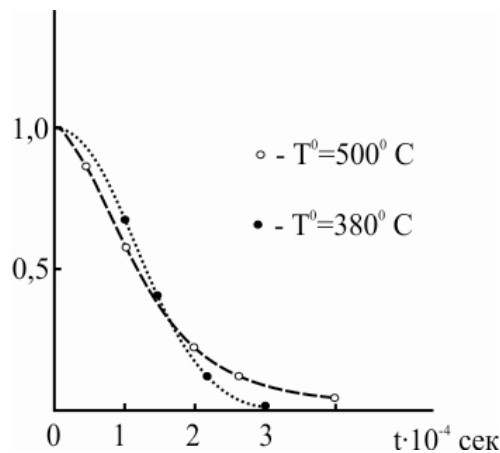


Рисунок 1. Температурная зависимость спада спиновой поляризации в образцах технического алюминия

Кривые  $g(t) \sim f(t)$  получали путем Фурье-преобразования формы спектральной линии ЯМР  $Al^{27}$ :

$$g(t) = \int_{-\infty}^{\infty} g(\Delta\omega) \exp(i\omega t) \quad (1)$$

Анализ представленных на рисунках 1 и 2 данных позволяет выделить несколько температурных областей, в которых происходят заметные структурные превращения в спиновых системах, заканчивающиеся образованием спиновых кластеров нано- и ангстремного размеров.

Так, в области температур  $T^0 \geq 500^{\circ}C$  спиновая система представляет собой единое целое и ее спиновая динамика описывается экспонентой:

$$g(t) = \exp(-\delta t), \quad (2)$$

где  $\delta H_{\text{лок}}$  - усредненная колебаниями решетки величина локального магнитного поля в целом по всему образцу алюминия (область представленных температур).

В области температур  $T^0 \sim 300^{\circ} \div 450^{\circ} C$  спиновая динамика описывается функцией Гаусса:

$$g(t) = \exp(-\Delta H_L^2 t^2), \quad (3)$$

где  $H_L$  – уже неусредненная величина локального магнитного поля, в образце поликристаллического алюминия, поскольку в этой области температур колебательные процессы решетки практически уже не оказывают влияние на величину  $H_L$ .

В области температур  $T^0 \sim 300^0 \div 20^0$  происходит дробление спин-системы на отдельные кластеры, в которых может содержаться от нескольких ядерных спинов до 30 единиц, т.е. происходит низкотемпературная наноструктуризация спиновой системы.

В этой области температур динамика спинов за счет квантовых эффектов коренным образом изменяется и описывается уравнением для квантового осциллятора [6]:

$$\frac{d^2 g(t)}{dt^2} = \frac{\gamma}{t} \frac{d}{dt} g(t) + \beta^2 g(t) = F(t), \quad (4)$$

решение, которого в общем виде имеет вид:

$$g(t) = \frac{I_\nu(\beta_k t)}{(\beta_k t)^\nu}, \quad (5)$$

где  $\beta_k = H_L(k)$  – локальное магнитное поле отдельного спинового кластера, а  $I_\nu$  – функция Бесселя, которая осциллирует с частотой  $\gamma H_L(t)$ , что позволяет экспериментально определить как размеры кластера, так и динамику его затухания от времени, т.е. очень важные в практическом плане характеристики наноструктурированной спиновой системы.

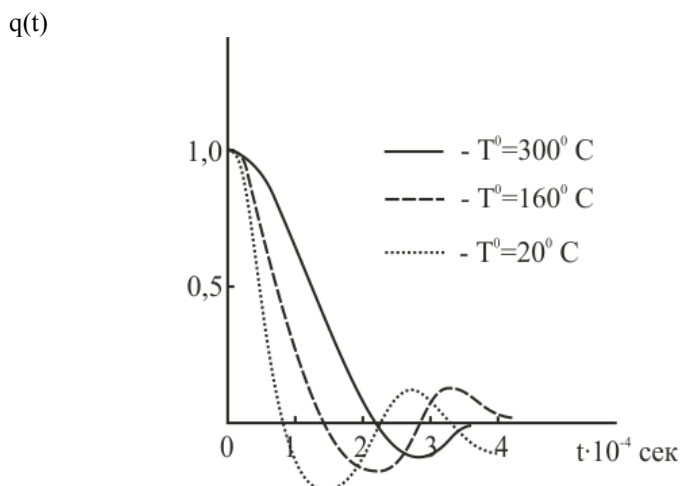


Рисунок 2. Температурная зависимость спада спиновой поляризации в образцах технического алюминия

В таблицах 1 и 2 и на рисунках 3 и 4 нами приведены данные по определению размеров спиновых кластеров в зависимости от температуры и количества примесных атомов меди в образцах технического алюминия.

Таблица 1. Влияние температуры на размеры спиновых кластеров и функцию их релаксации при формировании наноструктур в образцах технического алюминия ( $Al^{27}$ ).

№	$T^0$ C	$N_{cp}$	Функция релаксации
1	-100	15,0	$g(t) = \frac{\sin(bt)}{bt}$
2	-70	14,6	
3	0	14,0	
4	30	13,0	
5	100	13,0	
6	200	12,0	
7	300	7,9	
8	400	2,0	$g(t) = \exp(-b^2 t^2)$
9	500	-	$g(t) = \exp(-bt)$

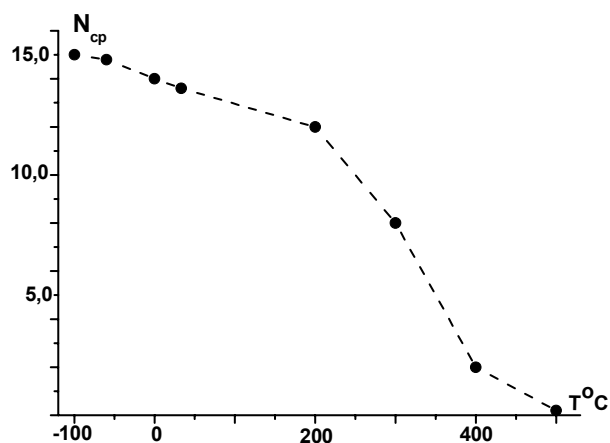


Рисунок 3. Температурная зависимость процесса спиновой кластеризации образцов технического алюминия ( $Al^{27}$ ).

Таблица 2. Количество спинов  $N_{cp}$  в наноструктурированных образцах технического алюминия ( $Al^{27}$ ) в зависимости от концентрации примесных атомов меди ( $Cu^{64}$ ). Измерения проводились в области комнатных температур.

№	T °C	N <sub>cp</sub>	C % атом
1	20	13,0	0,0
2	22	12,1	0,1
3	20	10,5	0,3
4	21	9,0	0,5
5	20	5,0	1,0

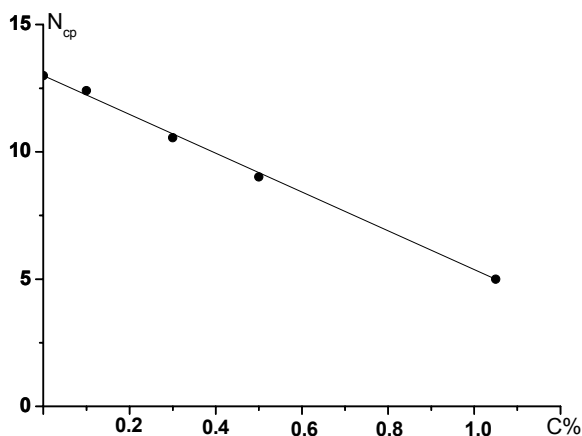


Рисунок 4. Зависимость количества спинов, содержащихся в нанокластерах технического алюминия ( $Al^{27}$ ) от концентрации примесных атомов меди ( $Cu^{64}$ ).

Таким образом, в процессе дробления спин-систем в поликристаллическом алюминии на отдельные квантовые наноструктуры начинается при температурах порядка  $300^{\circ}C$  и продолжается вплоть до азотных температур. Причем чем ниже температура, тем больше размеры квантовых нанокластеров (см. данные таблицы 1 и рис. 3). Но при этом все нанокластеры имели ангстремные размеры (т.е. не превышали несколько десятков ангстрем).

В то же время примесные атомы, которые выступали в наших экспериментах в виде точечных дефектов, приводили к уменьшению квантово-размерных структур, что объясняется, по-видимому, влиянием квадрупольных

взаимодействий, т.е. с увеличением концентрации примесей уменьшается в образце количество когерентно взаимодействующих спиновых состояний.

#### Литература

1. Polyakov A., Bitenbaev M., «NMR Study of Transport of Nuclear Spin Polarization in Sodium Hypophosphite. Solid State Sciences, 9, 2008, p. 271-275
2. Поляков А., Битенбаев М., «Исследование спиновой проводимости в квантоворазмерных спиновых структурах», Вестник ИЭ РК, №5, стр. 37-42.
3. Поляков А., Битенбаев М., «Исследование процессов телепортации квантовых состояний в спиновых наноструктурах для спинтроники», ДАН НАН РК, №1, 2010, стр. 41-45.
4. Огнев А.В., Самардак А.С., «Спинтроника: физические принципы, устройства и преспекивы» Вестник ДВО РАН, 2006, №4, стр. 70-80.
5. Zutic I., Fabian Ia., Sarma S. «Spintronics: Fundamentals and applications», Rev. mod. Phys., 2004, v76, p.323-327.
6. Polyakov A., Perov E., Koishiev. «Analysis forms NMR line in solid states», Inter. Conf. «Nucl. and rad. Phys.», Almaty, 2004, p.93-96

### ИМПУЛЬСНЫЙ ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ $\text{SiO}_2$ : ВРЕМЕННАЯ ОЦЕНКА ПРОЦЕССА И СВОЙСТВА НАНОПОРОШКА

Сазонов Р.В., Ремнёв Г.Е., Пономарёв Д.В., Кайканов М.И., Холодная Г.Е.  
Национальный исследовательский Томский политехнический университет  
634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, тел. 8 (3822) 418540, E-mail: galina\_holodnaya@mail.ru

*Представлены результаты исследования длительности плазмохимического синтеза и анализ свойств наноразмерного диоксида кремния. Порошки синтезированы в цепном плазмохимическом процессе, иницируемом импульсным электронным пучком. Наноразмерный  $\text{SiO}_2$  состоит из частиц диаметром 8...20 нм. Эксперименты показали, что все физико-химические процессы в реакционной камере длятся не более 0,3 с.*

#### Введение

Открывшиеся в 90-е годы значительные перспективы использования особых, иногда уникальных физических, химических, механических, биологических свойств наноразмерных частиц и материалов на их основе позволили признать их применение новой «ключевой» технологией XXI века. Основную часть наноматериалов в настоящее время составляют оксиды. При этом наиболее широко используются оксиды  $\text{SiO}_2$  (28,5%),  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (22,1%),  $\text{TiO}_2$  (8,8%).

Диоксид кремния обладает высокой химической стойкостью и низкой себестоимостью сырья. Диоксид кремния используют в производстве стекла, керамики, для получения кремния, как наполнитель в производстве резин, при изготовлении кремнеземистых огнеупоров, в хроматографии.

Наиболее распространенными промышленными методами получения наноразмерного диоксида кремния являются классический сульфатный метод и хлорный процесс. Широкое применение нанодисперсных порошков с уникальными свойствами сдерживается высокой стоимостью их получения. Поэтому в настоящее время ведется разработка новых энергосберегающих технологий синтеза.

Плазмохимический синтез диоксида кремния имеет ряд особенностей позволяющих снизить энергозатраты. Совмещение реакционной зоны с газоразрядной позволяет локально нагревать реагенты до высоких температур без нагрева стенок реактора, что значительно сокращает непроизводительные потери энергии. Следующий шаг по снижению энергозатрат на проведение химического процесса – использование неравновесных плазмохимических процессов, характеризующихся значительным превышением запаса энергии на внутренних степенях свободы молекул по сравнению с равновесным состоянием. В этом случае температура газа не превышает 300 – 400 К, что значительно снижает потери энергии на его нагрев, а также облегчает закалку (стабилизацию) продуктов химического процесса [1].

Таким образом, импульсный плазмохимический синтез нанодисперсных порошков имеет ряд преимуществ по сравнению с традиционными промышленными методами. Прежде всего, это низкие энергозатраты за счет реализации цепного механизма синтеза, возможность регулирования размера частиц получаемого продукта, снижение количества примесей благодаря низкой температуре процесса.

До настоящего времени неизученным остается вопрос длительности процесса плазмохимического синтеза нанодисперсного диоксида кремния иницируемого импульсным электронным пучком. Продолжительность процесса плазмохимического синтеза нанодисперсного диоксида кремния является определяющим фактором при разработке проточно - импульсного плазмохимического реактора. Целью работы являлось экспериментальное исследование длительности плазмохимического синтеза и анализ свойств нанодисперсного диоксида кремния.

#### Экспериментальная часть

Синтез нанодисперсных оксидов проводился на базе лабораторной установки, включающей в себя: импульсный электронный ускоритель ТЭУ-500 [2], реакционную камеру, стенд для определения временной оценки процесса синтеза. Параметры ускорителя: энергия электронов – 450 – 500 кэВ; выведенный ток электронов – до 12 кА;

длительность импульса (на полувысоте) – 60 нс; частота следования импульсов – до 5 имп./с; энергия в импульсе – до 200 Дж.

Для исследования длительности процесса синтеза нанодисперсных оксидов был разработан экспериментальный стенд, схема которого представлена на рисунке 1. Особенностью стенда являлось наличие в конструкции плазмохимического реактора двух соосных патрубков для монтажа двух кварцевых стекол, играющих роль смотровых окон.

На одном из кварцевых стекол устанавливался лазерный источник излучения. У противоположного смотрового окна располагалось устройство фоторегистрации быстропротекающих процессов – фотозумножитель (ФЭУ). Основные параметры устройства: интегральная чувствительность катода к световому потоку – 168,0 мкА/лм; коэффициент чувствительности к красной области спектра –  $208,0 \cdot 10^{-3}$ ; интегральная чувствительность анода к световому потоку – 38,8 мкА/лм; темновой ток анода – 0,07 нА; интерференционные колебания – 1,06 мВ; ток в контуре – 6,6 мА.

Плазмохимический реактор предварительно откачивался до давления 1 Торр. Далее в реактор подавался кислород, водород и тетрахлорид кремния. Полная конверсия галогенида происходила за один импульс электронного пучка. После инъекции электронного пучка в смесь в реакционной камере образовывался наноразмерный порошок. Был проведен ряд экспериментов с использованием различных концентраций исходных реагентов (см. табл. 1).

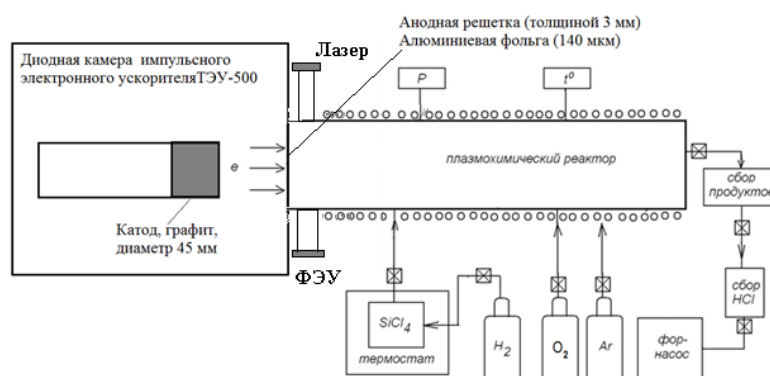


Рисунок 1 – Схема эксперимента

Таблица 1 – Концентрация исходных реагентов

№	Давление газ, Торр			Результат
	O <sub>2</sub>	H <sub>2</sub>	SiCl <sub>4</sub>	
1	195	105	105	смесь не воспламенилась
2	135	105	105	порошок белого цвета
3	135	105	105	порошок белого цвета
4	135	105	105	порошок белого цвета

Зависимость напряжения с фотодиода от времени представлена на рисунке 2.

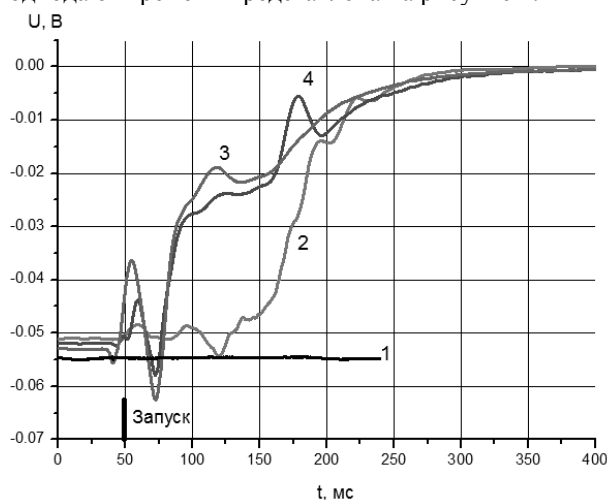


Рисунок 2 – Зависимость напряжения с фотодиода от времени (на графике цифры 1 – 4 соответствуют номерам экспериментов, описанных в таблице 1)

После каждого эксперимента, наработанный порошок диоксида кремния собирался и взвешивался. Смотровые окна очищались от осевшего на них порошка и побочных продуктов плазмохимической реакции (паров HCl). Как можно видеть из рисунка, при отсутствии воспламенения (кривая 1) напряжение с катода ФЭУ не изменяется. На фронтах всех кривых имеются пики. Наличие подобных пиков может быть объяснено несколькими



причинами: а) лазерное излучение поглощается плазмой импульсного электронного пучка, что авторам кажется маловероятным из-за большей продолжительности плазмообразования (50 – 150 мс) при длительности ИЭП – 60нс; б) наличие пиков может объясняться взрывом кислород-водородной смеси (наиболее быстрой реакции протекающей в плазмохимическом реакторе после инъекции ИЭП). Однако если предположить, что воспламеняется стехиометрическая смесь  $2\text{H}_2$  и  $\text{O}_2$ , а оставшийся кислород тратится на синтез диоксида кремния, то период индукции воспламенения подобной смеси при инъекции ИЭП должен составлять 4 4,2 мс, как видно из рисунка 3.

Наличие в составе исходной реакгентой смеси электроотрицательного газа с большим сечением ионизации (тетрахлорид кремния) может влиять на смещение периода индукции воспламенения кислород водородной смеси [3]. Оценка влияния наличия буферного нейтрального либо электроотрицательного газа на характеристики воспламенения кислород водородной смеси требуют дополнительных исследований.

Эксперименты показали, что все физико-химические процессы в реакционной камере длятся не более 0,3 с.

Свойства синтезированных порошков были проанализированы с помощью просвечивающей электронной микроскопии, элементный состав исследован с помощью рентгенофлуоресцентного спектрометра «Oxford ED2000», термостимулированной ионной масс-спектрометрии для определения сорбционных характеристик наноразмерного диоксида кремния в отношении к побочным продуктам в плазмохимическом реакторе. Установка для исследования термостимулированной десорбции из твердотельных материалов состоит из высоковакуумной камеры и насосов, устройства нагрева образца, масс спектрометра и системы регистрации параметров процесса выделения растворенных и адсорбированных атомов и молекул.

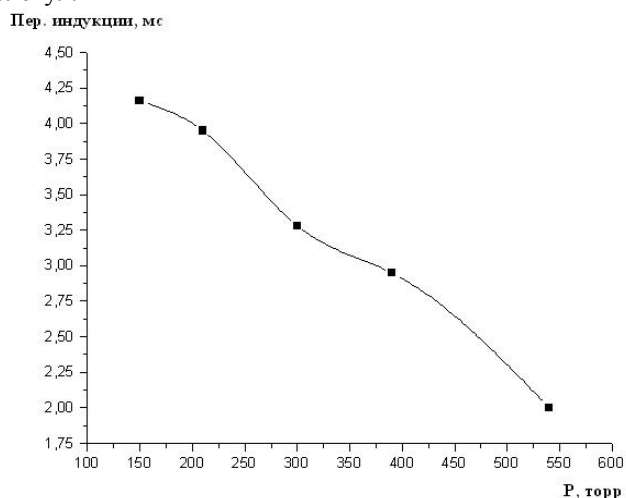


Рисунок 3 – Зависимость периода индукции от исходного давления кислорода и водорода

На рисунке 4 представлена ПЭМ - фотография частиц диоксида кремния.

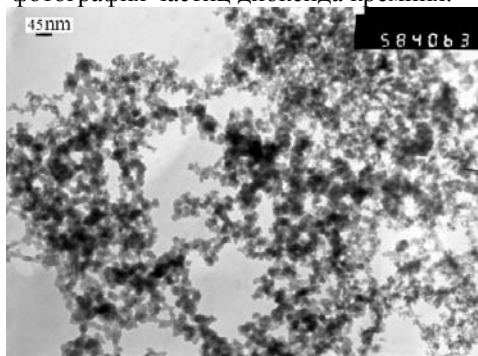


Рисунок 4 – ПЭМ – фотография частиц диоксида кремния

На рисунке 5 показана гистограмма, полученная с помощью программы Microcal Origin. Аппроксимация гистограммы выполнена по нормальному закону с помощью встроенной функции, которая рассчитывает средний геометрический размер частиц и разброс значений.

Из рисунков 4-5 видно, что частицы имеют сферическую форму, размер частиц лежит в диапазоне от 8 нм до 20 нм. Распределение частиц по размерам – однородно, практически отсутствуют частицы больше 50 нм.

Химический состав наноразмерных порошков  $\text{SiO}_2$  был определен на энергодисперсионном рентгенофлуоресцентном спектрометре «Oxford ED2000». Результаты анализа приведены в таблице 2.

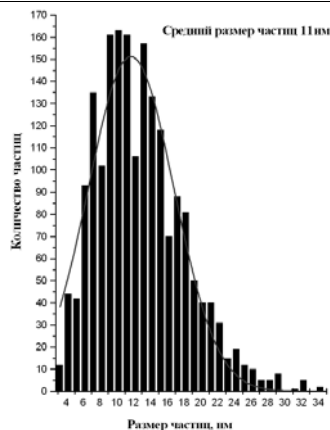


Рисунок 5 – Гистограмма, полученная с помощью программы Origin

Таблица 2 – Химический состав наноразмерного диоксида кремния

Элемент	Содержание, мас. %
Si	99,50 ± 0,08
Fe	0,22 ± 0,01
Cu	0,058 ± 0,004
Zn	0,04 ± 0,01

Энергодисперсионный рентгено-флуоресцентный спектрометр «Oxford ED2000» позволяет регистрировать элементы с порядковым номером более 10 (Na и выше), поэтому нет данных по содержанию кислорода.

Побочными продуктами цепного плазмохимического синтеза являются вода и хлороводород. В связи с развитой поверхностью нанодисперсного диоксида кремния велика вероятность физической и химической адсорбции побочных продуктов цепной реакции, что отрицательно сказывается на качестве наноксида. Поэтому, наибольший интерес вызвали исследования содержания воды и хлороводорода в синтезируемом нанопорошке. Кроме нескольких образцов полученных импульсным плазмохимическим синтезом анализировался коммерческий нанопорошок. Результаты исследования представлены на рисунке 6.

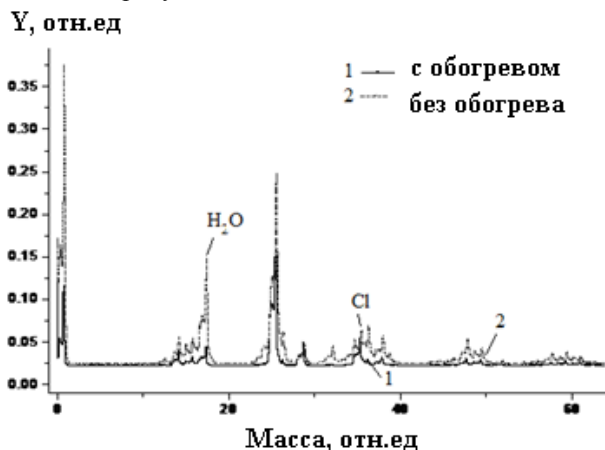


Рисунок 6 – Масс – спектры исследуемого образца

На рисунках 7 и 8 показаны масс-спектры исследуемых образцов.

Из рисунка 7 видно, что содержание хлора в порошке образца 4 превышает количества его в образцах 1, 2 и 3. Аналогичная картина наблюдается и с содержанием воды в образцах.

#### Закключение

Таким образом, в работе представлены результаты исследования длительности плазмохимического синтеза, морфологии и химического состава наночастиц диоксида кремния полученного в результате плазмохимического синтеза, инициируемого импульсным электронным пучком, из газо-фазной смеси тетрахлорида кремния, водорода и кислорода. В промышленном образце наноразмерного порошка содержание хлора, приблизительно, в 15, а воды, приблизительно, в 3 раза выше, чем в диоксиде кремния, полученном с помощью цепного плазмохимического синтеза. Для реализации цепного плазмохимического синтеза использовались технический кислород и водород, что сказалось на количестве примесей, основную часть которых удастся избежать при использовании химически чистых реагентов. В ходе работы показана возможность получения нанодисперсного оксида кремния не загрязненного побочными продуктами цепного плазмохимического синтеза.

А также эксперименты показали, что все физико-химические процессы в реакционной камере длятся не более 0,3 с. За 1 импульс масса получаемого порошка достигала  $\approx 1.5$  г. Это позволяет получить потенциальную производительность пилотной установки 10 – 15 кг/час.

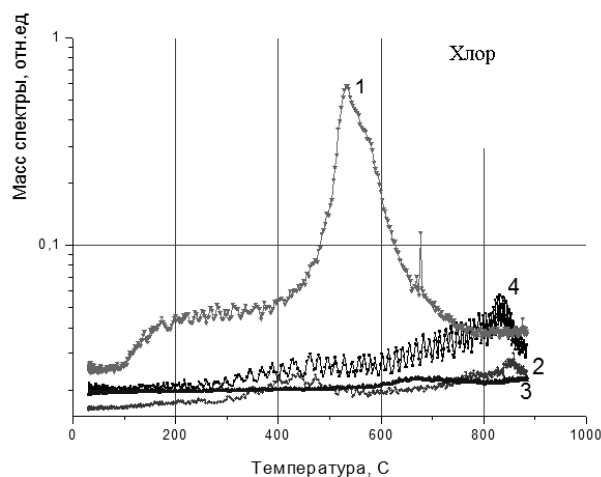


Рисунок 7 – Спектры термостимулированного газовыделения из исследуемых образцов: 1 – коммерческий порошок; 2, 3, 4 – образцы диоксида кремния, которые соответствуют номерам экспериментов, описанных в таблице 1

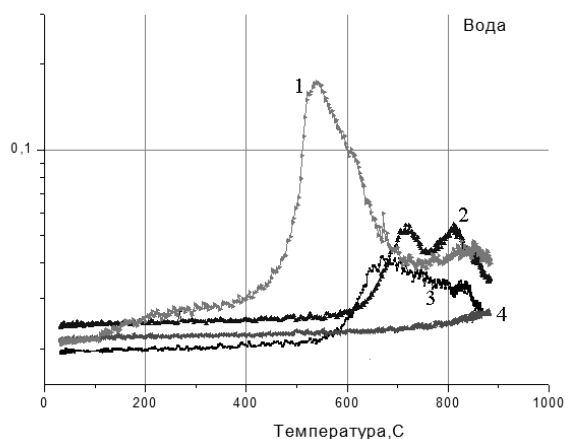


Рисунок 8 – Спектры термостимулированного газовыделения из исследуемых образцов: 1 – коммерческий порошок; 2, 3, 4 – образцы диоксида кремния, соответствуют номерам экспериментов, описанных в таблице 1

*Работа выполнена в рамках Федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009-2013 гг., в рамках реализации мероприятия 1.3.2 «Проведение научных исследований целевыми аспирантами» Проект: Плазмохимическое гидрирование тетрахлорида кремния, ГК № 14.740.11.1181.*

#### **Литература**

1 Пушкарев А.И., Новоселов Ю.Н., Ремнев Г.Е. Цепные процессы в низкотемпературной плазме. – Новосибирск: Наука. – 2006. – 226 с.

2 Ремнев Г.Е., Фурман Э.Г., Пушкарев А.И., Карпузов С.Б., Кондратьев Н.А., Гончаров Д.В. Импульсный сильноточный ускоритель с согласующим трансформатором // Приборы и техника эксперимента. – 2004. – № 3. – С. 130–134.

3 A.I. Gusev, A.A. Rempel Nanokristalicheskie materials. – М.: Physmatlit. – 2001. – 223 p.

## ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ОБЛУЧЕНИЯ ЭПИТЕПЛОВЫМИ НЕЙТРОНАМИ НА СВЯЗЫВАЮЩУЮ СПОСОБНОСТЬ БЕЛКОВ СЫВОРОТКИ КРОВИ

А.А.Ким,<sup>1</sup> Джураева,<sup>1</sup> Ю.Н.Коблик,<sup>1</sup> Г.А.Кулабдуллаев<sup>1</sup>, Г.А. Абдуллаева,<sup>1</sup> И.Р.Мавлянов,<sup>2</sup> Б.В.Шукуров,<sup>2</sup><sup>1</sup> Институт ядерной физики АН РУ, 100214, Ташкент, Узбекистан,<sup>2</sup> Ташкентская Медицинская Академия МЗ РУ, Ташкент, ул. Фароби 2.**ВВЕДЕНИЕ**

В настоящее время из всех известных вариантов лучевой терапии одним из перспективных методов является нейтрон-захватная терапия с бором-10 (БНЗТ). Впервые предложенная Гордоном Лочером (Gordon Locher) в 1936 году, БНЗТ, является бинарным методом радиотерапии, соединяющим два компонента, которые по отдельности оказывают незначительный эффект на клетки, но совместно могут оказать благоприятное терапевтическое воздействие. Первый компонент – это стабильный изотоп бора, который может накапливаться в клетках определенных видов опухолей головного мозга и меланомах. Второй – это пучок низкоэнергетических нейтронов. Бор должен находиться в опухолевых клетках либо рядом с ними. Образующиеся в результате захвата ядром <sup>10</sup>B захвата теплового нейтрона тяжелые высокоэнергетические заряженные частицы уничтожают только клетки, находящиеся только в непосредственной близости к атомам бора, и в основном не оказывая воздействия на прилегающие нормальные клетки [1,2].

Несмотря на то, что с 1936 года в мире было проведено большое количество физических и медицинских исследований по нейтрон-захватной терапии многие вопросы остаются недостаточно исследованными. Одним из таких вопросов является определение разрушающего воздействия облучения эпитепловыми нейтронами на транспортную систему белков крови человека. Исследование этого вопроса актуально в связи с тем, что при внутривенном введении часть бор-содержащего препарата остается в крови и под воздействием нейтронного облучения может оказывать разрушающее действие на транспортные белки крови. Такие же события могут происходить при локальном введении бор-содержащих препаратов в опухоль, поскольку при этом часть препарата также поступает в кровь и выносится транспортными системами крови.

Целью данных исследований является оценка фонового воздействия облучения эпитепловыми нейтронами на транспортные белки сыворотки крови *in vitro* и в присутствии <sup>10</sup>B.

**ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ И ОБСУЖДЕНИЕ**

Для оценки влияния фонового воздействия облучения пучком эпитепловых нейтронов на связывающую способность транспортных белков сыворотки крови человека было проведено облучение отобранных образцов крови здоровых добровольцев в возрасте от 20 до 40 лет. Отбор образцов крови, приготовление сыворотки крови и определение общего белка и альбумина проводили в Ташкентской Медицинской Академии на кафедре клинической фармакологии. В образцах сыворотки содержание общего белка и содержание альбумина определяли стандартными лабораторными биохимическими методами.

Таблица 1 – Характеристики исследованных образцов.

№ образца сыворотки крови	Пол	Возраст	Содержание общего белка	Содержание альбумина	Содержание альбумина в 20 мкл сыворотки
2 1VI	Мужской	25 лет	74 г/л	54% (39,96 г/л)	799,2 мкг
2 4VI	Мужской	25 лет	78 г/л	57% (44,46 г/л)	889,2 мкг
3 1VI	Мужской	29 лет	78 г/л	62% (48,36 г/л)	967,2 мкг
3 2VI	Мужской	31 год	80 г/л	60% (48,0 г/л)	960 мкг
4 2VI	Мужской	33 года	75 г/л	62% (46,5 г/л)	930 мкг
8 3 VI	Мужской	28 лет	82 г/л	62% (50,84 г/л)	1016,8 мкг

Аликвоты образцов сыворотки по 250 мкл облучали нейтронным пучком на атомном реакторе ВВР-СМ в течение 1 часа. Плотность потока нейтронов на образцах в эпитепловой и быстрой областях энергий была равна  $6,5 \cdot 10^8$  и  $3,6 \cdot 10^5$  н/см<sup>2</sup>·с соответственно [3]. Для анализа влияния нейтронного воздействия использовали разработанный нами радиохимический аналитический метод определения *in vitro* связывающей способности транспортных белков крови человека [4].

Эксперименты проводили по следующей схеме:

Приготавливали инкубационную смесь: 10 мкл меченого препарата (дротаверина, фурсемида, изониазида, этамбутола, или преднизолон) + 270 мкл буфера + 20 мкл сыворотки. В образцы вносили по 1 мкг препаратов дротаверина, фурсемида, преднизолон, этамбутола и изониазида в 10 мкл раствора. После этого образцы инкубировали 30 минут при комнатной температуре. После инкубации отделяли фракцию белков гель-фильтрацией на микроколонке, содержащей 100 мг Sephadex, предварительно уравновешенной буферным раствором (10 мМ Трис-НСl, 0,14 М NaCl, pH 7,4). На колонку наносили весь объем реакционной смеси, собирали первую фракцию 300 мкл, и измеряли радиоактивность на счетчике РЖС-05 в толуольном сцинтилляционном коктейле (в 1л толуола 4г РРО и 0,05 г РОРОР). В контрольном образце измеряли радиоактивность без гель-фильтрации, чтобы определить степень тушения сцинтилляции и эффективность счета сцинтиллятора в каждом образце. Измеренную радиоактивность пересчитывали на количество меченого препарата, связанного с белками сыворотки крови. Обобщенные результаты

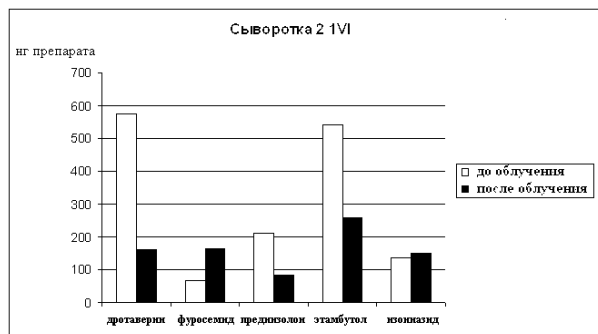
связывания меченных препаратов с белками сыворотки крови до и после облучения эпитепловыми нейтронами представлены в таблице 2 и рисунке 1.

Полученные данные показывают, что облучение эпитепловым нейтронным пучком сыворотки крови человека меняет характеристики связывания меченных тритием фармакологических препаратов с транспортными белками сыворотки в различной степени. Но при этом не наблюдается полной денатурации лиганд-связывающих сайтов альбумина. Исходя из этого, можно достаточно уверенно предположить, что облучение пучком эпитепловых нейтронов в целом не оказывает разрушающего воздействия на связывающую способность транспортных белков сыворотки крови человека.

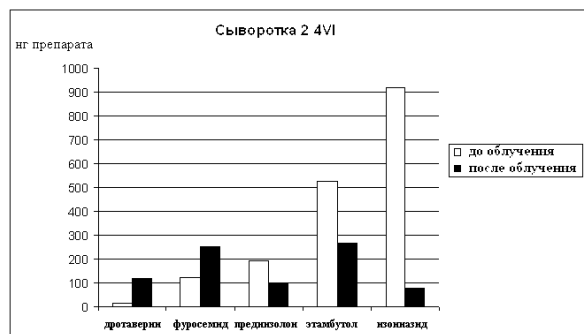
Нами также было исследовано воздействие пучка эпитепловых нейтронов на связывающую способность транспортных белков сыворотки крови человека в присутствии бора. Отбор образцов крови здоровых добровольцев в возрасте от 20 до 40 лет, приготовление сыворотки крови и определение общего белка и альбумина также проводили в Ташкентской Медицинской Академии.

Таблица 2. Связывание меченных дроптаверина, фуросемида, преднизолона, этамбутола и изониазида с белками сыворотки крови до и после облучения нейтронным пучком на атомном реакторе ВВР-СМ ИЯФ АН РУз.

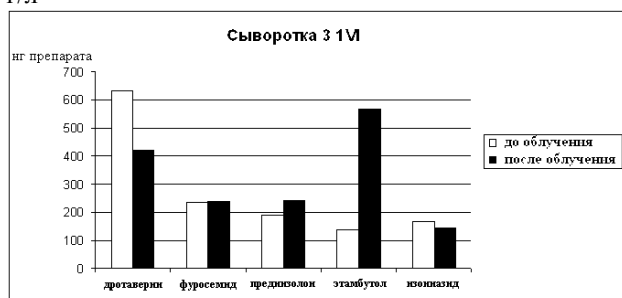
№ образца	Количество связанного с белками меченного:				
	дроптаверина, нг/20 мкл сыворотки	фуросемида, нг/20 мкл сыворотки	преднизолона, нг/20 мкл сыворотки	этамбутола, нг/20 мкл сыворотки	изониазида, нг/20 мкл сыворотки
<b>Сыворотка крови до облучения нейтронным пучком</b>					
2 1VI	576,5	67,8	211,8	539,7	136,1
2 4 VI	14,7	120,8	193,5	524,7	920,3
3 1VI	630,8	235,0	189,8	136,5	166,8
3 2VI	314,0	190,3	177,4	306,1	195,3
4 2 VI	362,7	366,8	144,8	442,2	148,9
8 3 VI	653,1	345,3	36,3	245,7	242,4
<b>Сыворотка крови после облучения нейтронным пучком</b>					
2 1VI	162,3	164,2	84,3	257,0	149,6
2 4 VI	118,8	254,6	97,1	265,2	78,0
3 1 VI	420,7	237,6	241,7	567,0	141,4
3 2 VI	560,0	394,5	79,8	409,1	136,8
4 2 VI	392,2	289,7	202,8	335,7	380,4
8 3 VI	445,4	328,8	120,5	207,2	246,5



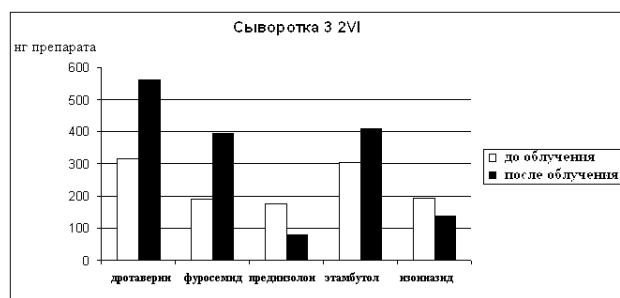
Сыворотка крови 2 1VI, содержание альбумина 39,96 г/л



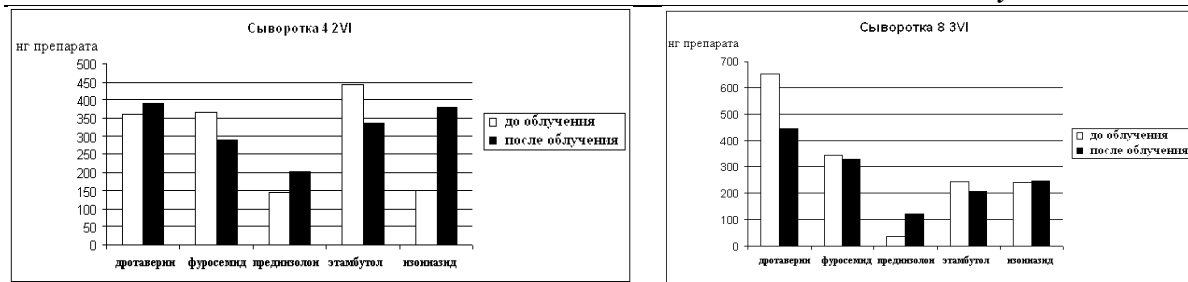
Сыворотка крови 2 4VI, содержание альбумина 44,46 г/л



Сыворотка крови 3 1VI, содержание альбумина 48,36 г/л



Сыворотка крови 3 2VI, содержание альбумина 48,0 г/л



Сыворотка крови 4 2VI, содержание альбумина 46,5 г/л

Сыворотка крови 8 3VI, содержание альбумина 50,84 г/л

Рисунок 1. Связывание меченных дротаверина, фуросемида, преднизолона, этамбутола и изониазида с белками сыворотки крови до и после облучения нейтронным пучком на реакторе ВВР-СМ (в норме концентрация альбумина в сыворотке крови = 35-50 г/л).

Таблица 3. Характеристики исследованных образцов:

№ образца сыворотки крови	Пол	Возраст	Содержание общего белка	Содержание альбумина	Содержание альбумина в 20 мкл сыворотки
1 3VI	Мужской	21 год	74 г/л	55% (40,70 г/л)	814,0 мкг
7 4VI	Мужской	23 года	76 г/л	57% (43,32 г/л)	866,4 мкг
5 1VI	Мужской	36 лет	73 г/л	59% (43,07 г/л)	861,4 мкг
10 2VI	Мужской	23 года	74 г/л	59% (43,66 г/л)	873,2 мкг
12 3VI	Мужской	25 лет	80 г/л	59% (47,20 г/л)	944 мкг
6 3VI	Мужской	29 лет	80 г/л	60% (48,00 г/л)	960 мкг

В качестве источника бора использовали боратный буфер с pH 7,4. 14,086 мМ раствор боратного буфера содержит 152,284 мг/л природного бора, из которого содержание <sup>10</sup>B составляет 30 мкг/мл. По литературным данным эффективная концентрация <sup>10</sup>B в облучаемой опухоли составляет примерно 30 мкг/г (в пересчете на боратный буфер: 14,086 мМ раствор боратного буфера содержит 152,284 мг/л природного бора, из которого содержание <sup>10</sup>B составляет 30 мкг/мл).

Для оценки воздействия нейтронного облучения на белки сыворотки крови нами была выбрана 50 мМ концентрация боратного буфера (с содержанием 106,49 мкг/мл <sup>10</sup>B в 3,55 раз выше терапевтической дозы). Применение боратного буфера в качестве источника бора в облучаемом образце, в отличие от фармакологических препаратов, не влияет на связывание фармакологических препаратов с белками сыворотки крови. Это в свою очередь позволяет изменять концентрацию бора в исследуемом образце в большом диапазоне.

Облучение образцов и анализ связывания препаратов проводили по вышеописанной схеме. Обобщенные результаты связывания меченных препаратов с белками сыворотки крови до и после облучения эпитепловыми нейтронами представлены в таблице 4 и рисунке 2.

Также как и в случае с фоновым облучением (без бора) нами было обнаружено, что облучение эпитепловым нейтронным пучком сыворотки крови человека в 50 мМ боратном буфере меняет характеристики связывания меченных тритием фармакологических препаратов с транспортными белками сыворотки в различной степени. Процент изменений связывания вполне сопоставим с изменениями при облучении в отсутствие бора. При этом также не наблюдается полной денатурации лиганд-связывающих сайтов альбумина. Полученные данные вполне согласуются с литературными данными, показывающими, что для полной денатурации белков необходимы более мощные дозы нейтронного облучения [5].

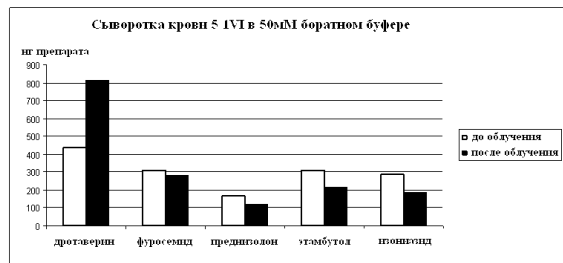
Таблица 4. Связывание меченных дротаверина, фуросемида, преднизолона, этамбутола и изониазида с белками сыворотки крови в 50 мМ боратном буфере до и после облучения нейтронным пучком на атомном реакторе ВВР-СМ ИЯФ АН РУз.

№ образца	Количество связанного с белками меченного:				
	дротаверина, нг/20 мкл сыворотки	фуросемида, нг/20 мкл сыворотки	преднизолон, нг/20 мкл сыворотки	этамбутола, нг/20 мкл сыворотки	изониазида, нг/20 мкл сыворотки
Сыворотка крови в 50мМ боратном буфере до облучения нейтронным пучком					
1 3VI	796,6	472,8	200,5	401,1	250,2
5 1VI	441,0	311,9	164,1	312,1	287,3
7 4VI	663,0	300,7	122,5	150,7	338,0
10 2VI	947,7	369,3	273,5	196,0	311,4
12 3VI	896,9	194,9	139,3	389,9	402,9
6 3VI	691,8	411,0	247,3	511,5	364,0

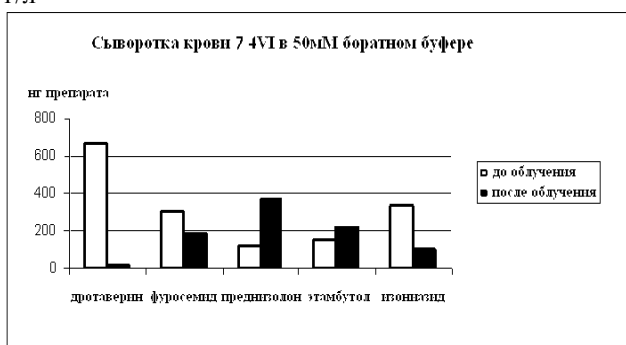
Сыворотка крови в 50мМ боратном буфере после облучения нейтронным пучком					
1 3VI	919,1	428,5	308,2	294,0	743,0
5 1VI	815,8	276,5	117,6	213,6	184,7
7 4VI	52,4	175,1	367,4	219,3	104,4
10 2VI	935,8	260,3	132,4	219,7	260,3
12 3VI	400	291,1	227,9	315,5	208,9
6 3VI	907,0	529,7	317,7	294,7	176,9



Сыворотка крови 1 3VI, содержание альбумина 40,70 г/л



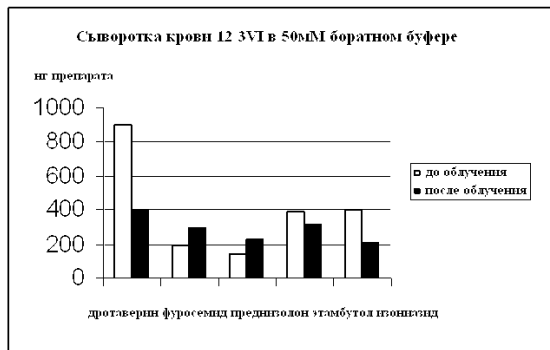
Сыворотка крови 5 1VI содержание альбумина 43,07 г/л



Сыворотка крови 7 4VI, содержание альбумина 47,20 г/л



Сыворотка крови 10 2VI, содержание альбумина 43,66 г/л



Сыворотка крови 12 3VI, содержание альбумина 47,20 г/л



Сыворотка крови 6 3VI, содержание альбумина 48,00 г/л

Рисунок 2. Связывание меченных дроптаверина, фуросемида, преднизолона, этамбутола и изониазида с белками сыворотки крови до и после облучения нейтронным пучком на реакторе ВВР-СМ в 50 мМ боратном буфере (в норме концентрация альбумина в сыворотке крови = 35-50 г/л).

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненные исследования и полученные данные позволяют достаточно уверенно предположить, что терапевтическое облучение пучком эпитепловых нейтронов в целом не оказывает разрушающего воздействия на связывающую способность транспортных белков сыворотки крови человека как в присутствии <sup>10</sup>B, так и в его отсутствие.

1. Nuclear medicine, by Ed. P.P. van Rijk, A.J. van Dongen, v. 1-3, Azu\Hku Ma-Imm, 1995.
2. Цыб А.Ф., Ульяненко С.Е., Мардынский Ю.С. Нейтроны в лечении злокачественных новообразований. Обнинск, 2003.
3. Г.А. Абдуллаева, Ю.Н.Коблик, Г.А. Кулабдуллаев. Использование реактора ВВР-СМ для развития метода нейтрон-захватной терапии в Узбекистане // Известия РАН, сер. Физическая, 2009, 73, №4. 540-543.
4. A.A.Kim, J.A.Dadakhonov, G.T Djuraeva, B.V.Shukurov, I.R.Mavlyanov. Estimation of drug-binding capacity of human serum proteins with use of tritium labeled medical preparations. The Fifth Conference "Nuclear Science and Its Application", 14-17 October 2008, Ankara, Turkey, Book of Abstracts, p.127.
5. Защита и восстановление при лучевых повреждениях. М., «Наука», 1966.



Исакова Ю.И., Холодная Г.Е.

Национальный исследовательский Томский политехнический университет  
634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, Тел. 8 (3822) 418540, E-mail: isakovamail@gmail.com**Введение**

Воздействие мощных ионных пучков (МИП)[1] на поверхность материалов инициирует целый ряд физических явлений термического, термомеханического и диффузионного характера, приводит к их структурным и фазовым превращениям. В результате изменяются свойства материалов: твердость, прочность, износостойкость; повышаются эксплуатационные характеристики изделий из них.

При разработке новых высокотехнологичных ускорителей, используемых для модификации поверхности материалов, основной задачей является получение максимального энерговклада в мишень и, что особенно важно, однородно по всей площади изделия. Поэтому одним из самых важных параметров МИП, который необходимо контролировать, является распределение плотности энергии пучка по сечению.

Распределение энергии пучка в поперечном сечении обычно измеряют секционированным калориметром. Для обеспечения пространственного разрешения 1-2 мм при площади МИП более 20 см<sup>2</sup> требуется сложная конструкция калориметра и процесс измерения занимает много времени. Этот метод не позволяет оперативно контролировать режим работы генератора МИП в течение обработки материалов.

Тепловизионная диагностика [2] параметров импульсных ионных пучков гигаватной мощности является эффективным методом оперативного контроля. Она позволяет измерять полную энергию МИП и распределение плотности энергии на мишени, оптимизировать работу ионного диода и контролировать режим облучения мишени. Пространственное разрешение составляет 0.9-1 мм, чувствительность типового тепловизора обеспечивает регистрацию теплового отпечатка за один импульс при плотности энергии выше 0.02 Дж/см<sup>2</sup>. Для корректного использования тепловизионной методики при контроле параметров МИП, формируемого диодом в двухимпульсном режиме, необходимо учесть вклад высокоэнергетичных электронов в нагрев мишени.

**1. Экспериментальная установка**

Исследования проводились на ионном ускорителе ТЕМП-4М [3] с параметрами: плотность ионного тока на мишени 30-200 А/см<sup>2</sup> (для различных конструкций диодов), энергия ионов 250-300 кВ, состав пучка: ионы углерода и протоны. Ускоритель работает в двухимпульсном режиме. Первый отрицательный импульс (300-600 нс, 100-150 кВ) служит для образования взрывоэмиссионной плазмы на потенциальном электроде, второй положительный импульс (150 нс, 250-300 кВ) служит для эмиссии ионов из плазмы и ускорения их в а-к зазоре. Для измерения полного тока диодного узла использовали пояс Роговского с обратным витком. Плотность ионного тока измеряли коллимированным цилиндром Фарадея с магнитной отсечкой электронов ( $B=0.4$  Тл). На Рис. 1 приведены осциллограммы полного тока и ускоряющего напряжения (экспериментальные и расчетные значения) при работе ускорителя ТЕМП-4М на активную нагрузку.

Расчет напряжения выполнен по соотношению  $U_{расч}(t) = R_n \cdot I(t) + L_n \cdot dI/dt$ , где  $L_n$  – паразитная индуктивность нагрузки, 240 нГ.

Для генерации ионного пучка в ускорителе ТЕМП-4М использовали диод с магнитной самоизоляцией электронов. Поперечное магнитное поле в анод-катодном (А-К) зазоре формируются собственным током диода, протекаемым по заземленному электроду. Основная часть исследований выполнена на диоде плоской геометрии размером 22 см×4.5 см, зазор 7-9 мм. Потенциальный электрод изготовлен из графита, заземленный электрод – из нержавеющей стали с прорезями 0.4 см×5 см, прозрачность 60%. Блок-схема диодного узла, схема измерения полного тока и плотности ионного тока в плоском полосковом диоде показаны на Рис. 2.

Для формирования МИП с плотностью энергии более 1 Дж/см<sup>2</sup> мы использовали полосковый диод с фокусирующей геометрией.

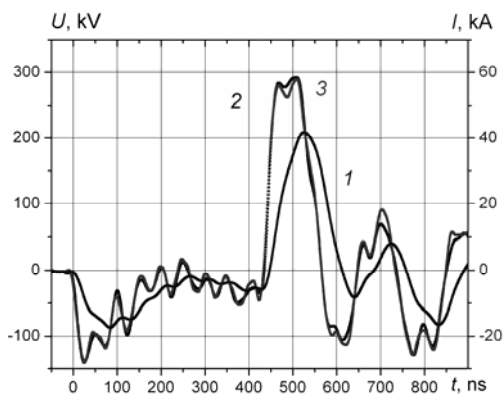


Рис. 1. Осциллограммы полного тока(1) и напряжения на потенциальном электроде (2).  
Кривая 3 – расчетное напряжение.

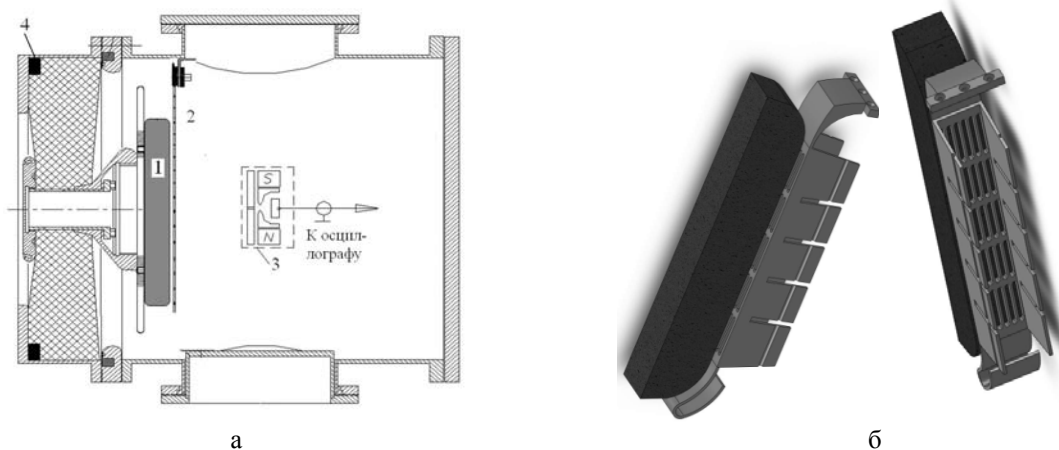


Рис. 2. Схема диодного узла (а) и 3-D модель (б) плоского полоскового диода: потенциальный электрод диода (1), заземленный электрод (2), колиммированный цилиндр Фарадея (3), пояс Роговского (4)

## 2. Методика измерения распределения плотности энергии ионного пучка с помощью тепловизора

Диагностика параметров МИП проводилась по тепловому отпечатку на мишени [2] с использованием тепловизора Fluke TiR10. Схема регистрации приведена на Рис. 3.

В качестве мишени мы использовали латунную пластинку толщиной 80 или 220 мкм (в зависимости от плотности энергии МИП). Для увеличения коэффициента излучения латуни задняя (от ионного пучка) сторона мишени покрывалась черной матовой краской ( $\epsilon = 0,90$ ). Тепловой отпечаток пучка регистрировали через выходное окно, расположенное на фланце диодной камеры. В качестве окна использовали плоскопараллельную пластину из фторида кальция ( $\text{CaF}_2$ ). Фторид кальция имеет неоднородное пропускание в спектральном диапазоне 7-14 мкм. Поэтому показания тепловизора отличаются от действительных значений температуры на мишени. Перед исследованиями была выполнена калибровка диагностического оборудования. Полученную градуировочную зависимость показаний тепловизора от действительных значений температуры на мишени в дальнейшем использовали при расчете плотности энергии МИП. Погрешность аппроксимации не превышала 5%.

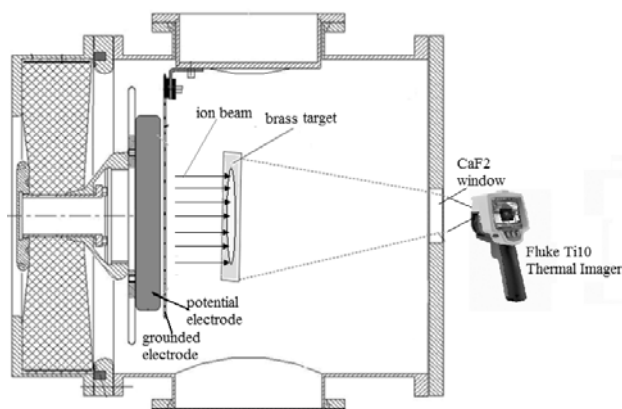


Рис. 3. Схема измерения распределения плотности энергии МИП

В качестве мишени мы использовали латунную пластинку толщиной 80 или 220 мкм (в зависимости от плотности энергии МИП). Для увеличения коэффициента излучения латуни задняя (от ионного пучка) сторона мишени покрывалась черной матовой краской ( $\epsilon = 0,90$ ). Тепловой отпечаток пучка регистрировали через выходное окно, расположенное на фланце диодной камеры. В качестве окна использовали плоскопараллельную пластину из фторида кальция ( $\text{CaF}_2$ ). Фторид кальция имеет неоднородное пропускание в спектральном диапазоне 7-14 мкм. Поэтому показания тепловизора отличаются от действительных значений температуры на мишени. Перед исследованиями была выполнена калибровка диагностического оборудования. Полученную градуировочную зависимость показаний тепловизора от действительных значений температуры на мишени в дальнейшем использовали при расчете плотности энергии МИП. Погрешность аппроксимации не превышала 5%.

Тогда плотность энергии МИП  $J$  можно определить по формуле:

$$J(x, y) = \frac{Q}{S} = c_v \cdot d \cdot \rho \cdot \Delta T(x, y), \text{ Дж / см}^2$$

где  $c_v$  - удельная теплоемкость латуни,  $d$  - толщина мишени,  $\rho$  - плотность латуни,  $\Delta T$  - нагрев мишени.

### 3. Анализ влияния электронов на нагрев мишени.

В ионном диоде, работающем в двухимпульсном режиме, вклад в нагрев могут вносить и ускоренные электроны, достигшие мишени на первом и втором импульсах, и ионы в течение второго импульса. Тепловизионная диагностика не позволяет разделить вклад электронов в нагрев мишени. Для того, чтобы оценить вклад электронов в

нагрев мишени, были проведены дополнительные измерения плотности электронов с использованием цилиндров Фарадея (без магнитной отсечки электронов).

На Рис. 4(а) приведены характерные тепловые отпечатки МИП на выходе плоского диода. Величина а-к зазора 8 мм, латунную мишень толщиной 100 мкм располагали на расстоянии 4 см от заземленного электрода. По данным распределения теплового поля на мишени, с учетом коэффициента пропускания окна, было рассчитано распределение температуры и плотности энергии в поперечном сечении МИП (рис. 4б).

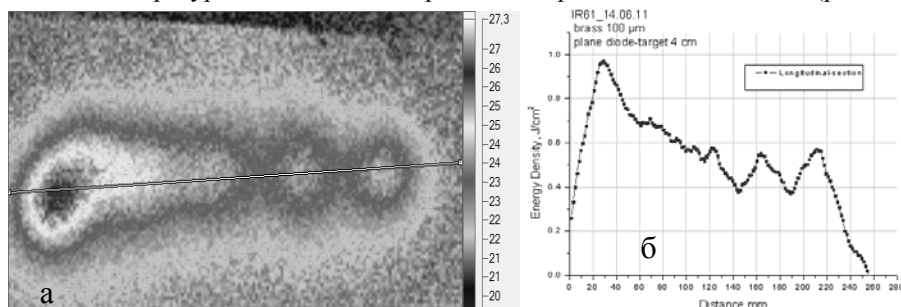


Рис. 4 Тепловой отпечаток пучка (а), формируемый плоским диодом и распределение плотности энергии по сечению (б)

На Рис. 5 приведены типичные осциллограммы ускоряющего напряжения и тока, регистрируемого ЦФ в фокусе полоскового диода.

Полная энергия электронов (интеграл произведения напряжения на электронный ток в течение первого импульса) составляет 3.3 Дж для данных Рис. 4. Тогда средняя плотность энергии электронов равна 0.04-0.05 Дж/см<sup>2</sup>, что значительно меньше плотности энергии МИП, измеренной тепловизионным методом (см. Рис. 4).

Аналогичные измерения были выполнены для диода фокусирующей геометрии.

Таким образом, для плоского и фокусирующего диодов, электроны, ускоренные на первом импульсе не вносят значительный вклад в нагрев мишени. Отпечаток теплового поля на мишени, регистрируемый тепловизором, образован в основном за счет нагрева мишени ионами.

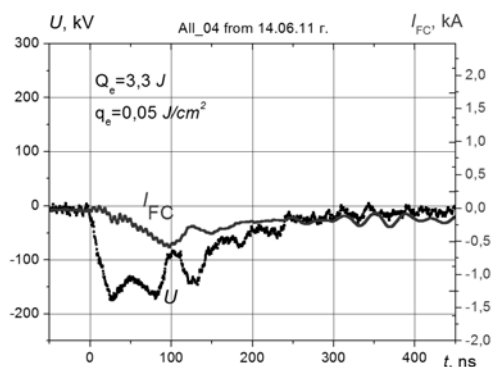


Рис. 5. Осциллограммы ускоряющего напряжения и тока, регистрируемого цилиндром Фарадея

#### 4. Исследование однородности генерации МИП по сечению

Исследования однородности генерации МИП по сечению показали, что при постоянном а-к зазоре наблюдается увеличение плотности ионного тока в нижнем (незаземленном) конце диода (см рис. 2). На рисунке 4(а,б) видно локальное увеличение температуры в конце диода.

Дополнительным подтверждением того, что увеличение температуры к нижней части диода по сравнению с верхней вызвано усилением плотности ионного тока в этой области, являются результаты одновременной регистрации плотности ионного тока двумя коллимированными цилиндрами Фарадея. На Рис. приведены данные регистрации плотности ионного тока коллимированными цилиндрами Фарадея, синхронно измеряющими МИП в начале диода ( $x=150$  мм на **Ошибка! Источник ссылки не найден.**) и в конце диода ( $x=10$  мм).

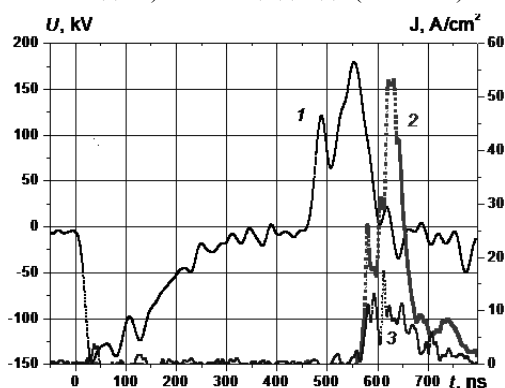


Рис. 6. Осциллограммы ускоряющего напряжения (1), плотности ионного тока внизу (2) и в веру диода (3)

Рассмотрим возможные причины, которые могли бы привести к увеличению плотности ионного тока в нижней части диода.

**4.1. Анализ неоднородности ускоряющего напряжения в а-к зазоре за счет индуктивного падения напряжения на заземленном электроде**

В диоде с магнитной самоизоляцией заземленный электрод соединен с корпусом камеры только с одной стороны. На втором (положительном) импульсе электроны движутся по заземленному электроду от точки заземления к области эмиссии в а-к зазор, вызывая падение напряжения вдоль электрода. Поэтому ускоряющее напряжение будет меняться по длине диода. Плотность ионного тока зависит от ускоряющего напряжения и будет меняться по длине диода. Основной вклад в падение напряжения на заземленном электроде будет вносить его индуктивность.

При условии однородной эмиссии электронов по площади заземленного электрода (на положительном импульсе) изменение тока диода по заземленному электроду (от точки заземления до точки на расстоянии  $x$  от точки заземления) можно рассчитать по соотношению:

$$I(x, t) = I_{np}(t) \frac{l_0 - x}{l_0}$$

где  $l_0$  – длина заземленного электрода.

Результаты расчетов падения напряжения на заземленном электроде и ускоряющего напряжения в а-к зазоре показаны на Рис. .

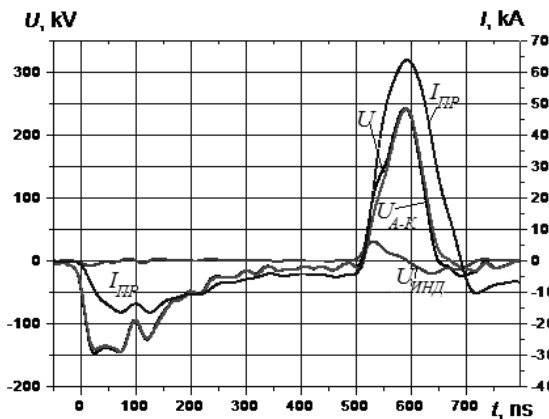


Рис. 7. Осциллограммы напряжения на потенциальном электроде  $U$ , полного тока диода  $I_{np}$ , падения напряжения на заземленном электроде  $U_{инд}$  и напряжение в а-к зазоре  $U_{ак}$  на 15 см от точки заземления

Выполненный анализ изменения ускоряющего напряжения по длине диода с магнитной самоизоляцией показал, что падение напряжения на заземленном электроде не превышает 25-30 кВ. Это падение напряжения приводит к незначительному изменению ускоряющего напряжения в конце диода и не может вызвать увеличение плотности ионного тока.

**4.2 Механизм локального увеличения плотности ионного тока**

До момента прихода второго импульса плазма на потенциальном электроде за счет теплового расширения двигается в сторону заземленного электрода со скоростью  $10^6$  см/с. Навстречу ей двигается плазма, образованная на заземленном электроде, вызывая сокращение а-к зазора. При достижении максимума полного тока (45 кА для рис. 1), магнитная индукция в зазоре достигает критического значения и, под действием скрещенных электрических и магнитных полей электроны будут заворачиваться к низу диода. В этом случае в нижней части диода наблюдается увеличение концентрации электронов. Ионы, выходя из потенциального электрода, попадают в область повышенной концентрации электронов, что приводит к локальной нейтрализации объемного заряда ионов, и увеличению их плотности в этой области.

Мы полагаем, что именно это приводит к локальному усилению плотности ионного тока в конце диода, что выйдно на тепловых отпечатках(рис. 5)

При увеличении а-к зазора в конце диода (по сравнению с началом) удастся получить более однородное распределение плотности энергии МИП.

**Заключение**

Диагностика МИП по тепловому отпечатку - это эффективный метод для быстрой оценки распределения плотности энергии пучка. Он обеспечивает измерение профиля пучка после одного импульса. Порог температурной чувствительности тепловизора Fluke TiR составляет 0.1 °С, что позволяет измерять плотность энергии пучка в диапазоне 0.05 – 5 Дж/см<sup>2</sup> без учета процессов эрозии и абляции на мишени. Время измерения не превышает 0.1 с, поэтому тепловизионную диагностику можно использовать при автоматизации обработки деталей с контролем параметров облучения на каждом импульсе.

Исследования влияния электронов в нагрев мишени показали, что электроны, генерируемые в течении первого импульса не вносят существенный вклад в нагрев мишени, таким образом, тепловизионная диагностика плотности энергии МИП может быть применена для контроля параметров МИП, формируемых диодом с магнитной самоизоляцией, работающем в двух импульсном режиме.

Исследования однородности генерации МИП по сечению показали, что при постоянном а-к зазоре наблюдается локальное увеличение плотности ионного тока в нижней части диода. Это связано с характером движения замагниченных электронов в а-к зазоре диода и с локальной компенсацией объемного заряда ионов.

*Работа выполнена при финансовой поддержке Федеральной целевой программы (ГК П943).*

**Литература**

1. Быстрицкий В.М., Диденко А.Н. Мощные ионные пучки.- М.: Эннергоатомиздат, 1984.-152 с.
2. H. A. Davis, R. R. Bartsch, J. C. Olson, D. J. Rej, and W. J. Waganaar. J. Appl. Phys. **82** (7), 3223 (1997).
3. Pushkarev A.I., Isakova J.I., Saltimakov M.S., Sazonov R.V. // Phys. of Plasmas. 2010. Vol. 17. 013104.

**ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ТЕЛЕПОРТАЦИИ КВАНТОВЫХ СОСТОЯНИЙ В НЕОДНОРОДНЫХ НАНОКЛАСТЕРИЗОВАННЫХ СПИНОВЫХ СТРУКТУРАХ.**

Д.В. Эбель<sup>1</sup>, М.И. Битенбаев<sup>1</sup>, А.И.Поляков<sup>1</sup>, Н.Е. Алмасбеков<sup>2</sup>

1) *Казахстан, Алматы, ТОО «Физико-технический институт» ННТХ «Парасат»*

2) *Казахстан, Алматы, Казахский национальный университет им. аль-Фараби*

**Введение.**

В работах [1,2] была установлена принципиальная возможность регистрации явления телепортации квантовых состояний, которое заключается в обмене когерентными спиновыми состояниями между двумя (или несколькими) однотипными и разнесенными в пространстве спиновыми подсистемами-кластерами:  $S_1, S_2, S_3, \dots, S_n$ . За однотипные в указанных работах принимались такие кластеры, которые характеризуются одинаковыми структурами, размерами, временами спиновой релаксации и близкими значениями частот квантовых переходов между уровнями зеемановского расщепления в постоянном магнитном поле  $H_0$ , т.е.  $\omega_1 \approx \omega_2 \approx \dots \approx \omega_n$ .

Однако на практике получать такие однотипные спиновые кластеры достаточно сложно. Поэтому возникает задача оценить влияние неоднородности спиновых наноструктур на характеристики процесса телепортации неравновесных квантовых состояний. Решению этого вопроса будет посвящено данное сообщение.

**§1. Теоретическая часть.**

Рассмотрим спиновую систему типа квантовой нити, т.е. состоящую из цепочки кластеров, спины которых связаны между собой сильным спин-спиновым взаимодействием. При этом будем считать, что спиновые кластеры могут различаться как размерами (количеством содержащихся в кластере спинов), так и временами релаксации. Условная схема такой цепочки приведена ниже на рис. 1.

Спиновый гамильтониан такой парамагнитной системы в равновесном состоянии имеет вид:

$$\hat{H}_s = \omega_0 \hat{H}_z + \hat{H}_{ss} + \hat{H}_{sr}, \tag{1}$$

где первый член  $\omega_0 \hat{H}_z$  описывает парамагнитную намагниченность, как отдельного кластера, так и всей спин-системы, а составляющие  $\hat{H}_{ss}$  и  $\hat{H}_{sr}$  – включают в себя, соответственно, спин-спиновые и спин-решеточные взаимодействия. Однако на рис. 1а первый спиновый кластер находится уже в неравновесном состоянии, для которого можно записать

$$\hat{H}_s = \omega_0 \hat{H}_z - \omega_1 \hat{H}_z \exp(i\omega_0 t) + \hat{H}_{ss} + \hat{H}_{sr}, \tag{2}$$

где член  $\omega_1 \hat{H}_z \exp(i\omega_0 t)$  отвечает за резонансное импульсное возбуждение одного из кластеров спин-системы. Тогда при условии

$$\omega_0 \hat{H}_z - \omega_1 \hat{H}_z \exp(i\omega_0 t) = 0 \tag{3}$$

мы будем иметь состояние спин-системы, представленное на рис. 1.

Если теперь в некий момент времени  $t = t_0$  возмущающее поле  $\omega_1$  будет выключено, то  $\hat{H}_s$  примет вид:

$$\hat{H}_s = \hat{H}_{ss} + \hat{H}_{sr} \tag{4}$$

и при  $\hat{H}_{ss} \gg \hat{H}_{sr}$  за счет межкластерных спин-спиновых взаимодействий по flip-flop механизму будет происходить спиновый обмен между отдельными кластерами (группами) спинов (как это указано на рис. 1) с вероятностью:  $W \sim cr^{-3}$ , где  $r$  – расстояние между отдельными группами спинов.

Такой процесс спинового обмена между отдельными, разнесенными в пространстве группами спинов получил в литературе название телепортации неравновесных, квантовых состояний [3,4]. Поскольку межкластерный спиновый обмен протекает одновременно с внутрикластерными, спин-решеточными взаимодействиями, то при условии:

$$\hat{H}_{ss} \ll \hat{H}_{sr} \tag{5}$$

будем иметь ситуацию, представленную на рис. 2.

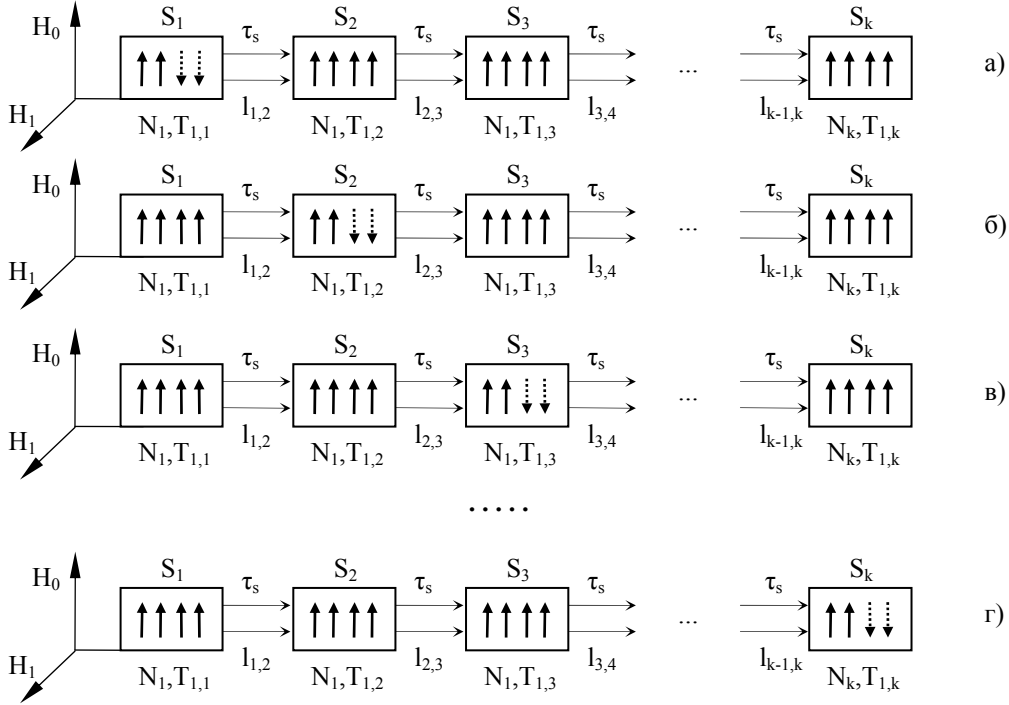
В этом случае количественный анализ процессов телепортации квантовых состояний заметно затруднен, но в принципе также возможен за счет тонкого анализа формы реально наблюдаемых спектров магнитного резонанса.

Теперь, используя схему на рис. 1 и 2, запишем систему уравнений для описания процесса передачи неравновесных квантовых состояний от одного кластера к другому:

$$\frac{dN_1(t)}{dt} = -\frac{N_1(t) - N_1^0}{T_{1,1}} \quad (6)$$

$$\frac{dN_2(t)}{dt} = -\frac{N_2(t) - N_2^0}{T_{1,2}} + \frac{dN_1(t)}{dt} \quad (7)$$

$$\frac{dN_3(t)}{dt} = -\frac{N_3(t) - N_3^0}{T_{1,3}} + \frac{dN_2(t)}{dt} \quad (8)$$



$$\frac{dN_k(t)}{dt} = -\frac{N_k(t) - N_k^0}{T_{1,k}} + \frac{dN_{k-1}(t)}{dt} \quad (9)$$

Рисунок 1 – Условная схема переноса неравновесных квантовых состояний по цепочке спиновых кластеров.

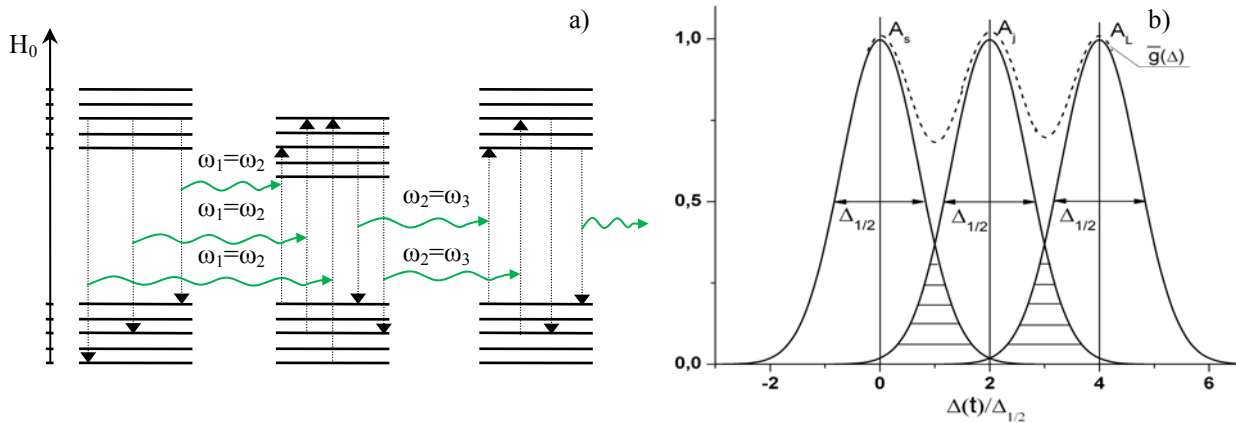


Рисунок 2 – Схема внутрикластерных и межкластерных квантовых переходов между уровнями зеемановского расщепления (а) и формы спектров магнитного резонанса  $g(\Delta)$  (б) в модельной спин-системе.

Решая последовательно приведенную выше систему уравнений можно проследить за динамикой процесса переноса (телепортации) квантовых состояний вдоль цепочки из спиновых кластеров при любой их неоднородности. Так, например, для двух первых (соседних) кластеров будем иметь:

$$\frac{N_1(t)}{N_1^0} = 1 - \exp\left(-t/T_{1,1}\right) \quad (10)$$



$$\frac{N_2(t)}{N_2^0} = 1 + \frac{N_1^0}{N_2^0} \cdot \frac{\exp(-t/T_{1,2})}{\tau_{1,2}} \cdot \frac{1 - \exp(\delta t)}{\delta}, \quad (11)$$

где  $\delta = \frac{1}{T_{1,1}} - \frac{1}{T_{1,2}}$ .

При условиях, когда спиновые нанокластеры являются однотипными, т.е.  $T_{1,1} = T_{1,2} = T_1$ ,  $T_{1,2} = \tau$ ,  $N_1^0 = N_2^0$ , уравнение (11) упрощается и совпадает с полученным в работе [2] уравнением для случая однородной спин-системы:

$$\frac{N_2(t)}{N_2^0} = 1 + k \cdot \frac{\tau}{T_1} \cdot \exp(-t/T_1), \quad (12)$$

где  $k = \frac{N_1^0}{N_2^0} \cdot \frac{T_1}{\tau}$  – коэффициент телепортации.

Из выражения (11) следует, что максимальная величина эффекта телепортации неравновесных квантовых состояний в неоднородных наноструктуризированных спин-системах достигается при следующих условиях:

$$N_1^0 \gg N_2^0 \gg \dots \gg N_k^0, \quad \tau \ll T_{1,1}, T_{1,2}, \dots, T_{1,k} \quad (13)$$

Таким образом, выполненный нами анализ показывает, что для регистрации эффектов телепортации квантовых состояний неоднородных наноструктуризированных спин-системах необходимо строго выполнять вышеуказанные условия (13). В случае нарушений этих условий величина эффекта телепортации квантовых состояний может заметно уменьшиться или исчезнуть совсем, что ниже будет показано нами экспериментально.

## §2. Эксперимент.

При выборе материалов мы остановили свой выбор на использовании фрагментов больших молекул, поскольку они представляют собой готовые спин-структуры со стабильными во времени структурными и динамическими (релаксационными) характеристиками. На наше решение повлияло также и то обстоятельство, что уже ранее образцы гипофосфита натрия нами использовались в экспериментах ЯМР по наблюдению эффектов на переходной поляризации ядер. Поэтому здесь нами рассматривался вопрос расширения числа химических соединений этого же класса, чтобы таким образом сохранить идентичность исследуемых структур и тем самым увеличить достоверность выполняемых экспериментов.

Во всех использованных нами системах можно выделить три разделенные в пространстве группы атомов водорода [1-2] (см. ниже структурную формулу).

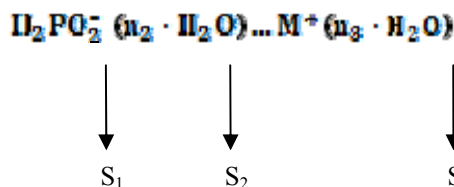


Рисунок 3 – Структурная формула молекулярных комплексов гипофосфитов.

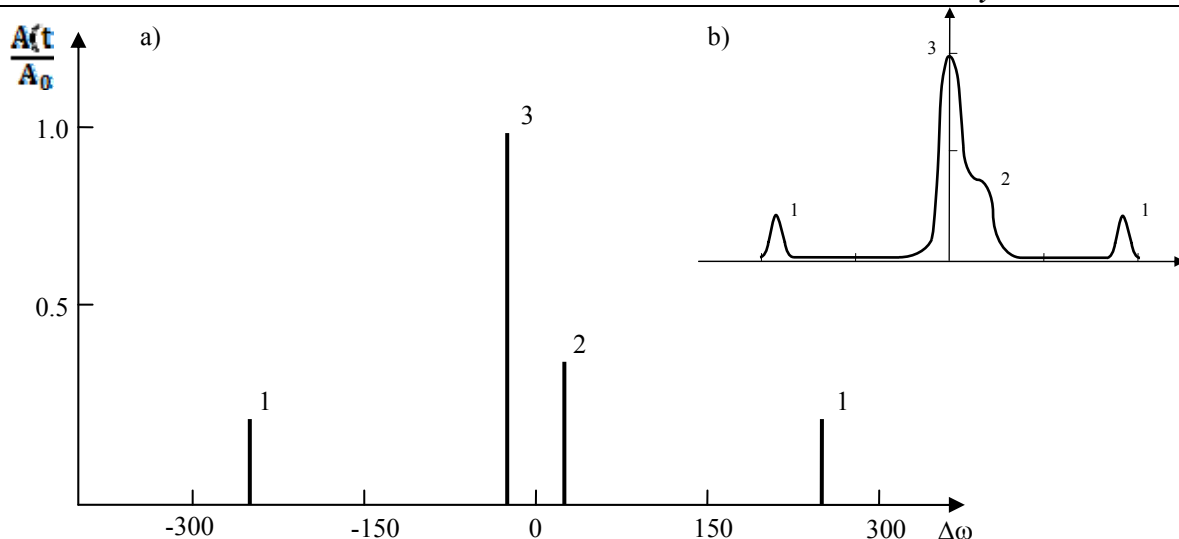
где  $M^+$  – обозначает ионы металлов:  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Ca}^+$ , а  $S_1, S_2, S_3$  – группы (кластеры) атомов водорода, обладающие

спином  $S = \frac{1}{2}$ .

Отметим также, что спектры ЯМР во всех выбранных химических соединениях практически однотипны, они состоят из четырех спектральных линий, две из которых заметно перекрываются (см. рис. 4). За счет перекрывания линий (2) и (3) и расщепления на дуплет линии ЯМР протонов первого кластера за счет их взаимодействия с ядром атома фосфора реально наблюдаются в спектре ЯМР гипофосфитов только три линии, как указано на рис. 3.

Отметим также, что стабильность водных растворов гипофосфитов, которая оказалась достаточно высокой, что оценивалось нами по данным ЯМР спектров. Следовательно, указанные растворы представляют собой достаточно удобные трехкластерные спиновые системы для проверки наших расчетов по переносу между ними неравновесной спиновой поляризации (квантовых состояний). Причем как уже отмечено выше гипофосфит натрия использовался ранее в работах [1,2] для описания эффектов телепортации квантовых состояний при обосновании модели спиновой проводимости. При этом образцы гипофосфита натрия рассматривались нами в приближении двухкластерной модели, поскольку спектры магнитного резонанса от протонов  $S_1$ - и  $S_2$ -кластеров заметно перекрываются. В данной работе мы рассматриваем уже случай трехкластерной модели.





- 1 – две линии ЯМР протонов атома водорода, входящих в состав молекулы гипофосфита (спиновый кластер №1)
- 2 – линия ЯМР протонов воды, связанной водородными связями с молекулой гипофосфита (спиновый кластер №2)
- 3 – линия ЯМР протонов свободных и гидротированных молекул воды (спиновый кластер №3)

Рисунок 4 – Линейчатый (а) и реальный (б) спектры ЯМР гипофосфитов различных металлов.

Далее из анализа спектров магнитного резонанса в водных растворах гипофосфитов натрия, калия и кальция нами были определены размеры всех трех кластеров (групп) протонных спинов и времена их релаксации, а результаты этих расчетов приведены ниже в таблице 1.

Таблица 1.

Данные по количеству спинов и времен релаксации в кластерах гипофосфитов.

№	Название химического соединения	Количество спинов в кластерах			Время спиновой релаксации в кластерах		
		n <sub>1</sub>	n <sub>2</sub>	n <sub>3</sub>	S <sub>1</sub>	S <sub>2</sub>	S <sub>3</sub>
1	гипофосфит натрия	2	4	16	0,7	1,2	1,7
2	гипофосфит калия	2	4	16	0,6	1,2	1,6
3	гипофосфит кальция	4	8	24	0,3	1,0	1,4

Из таблицы 1 видно, что при переходе от гипофосфита натрия к гипофосфиту кальция заметно изменяется как размер кластера, так и их времена релаксации.

Теперь используя данные таблицы 1 оценим по уравнениям (11) и (12) коэффициенты телепортации квантовых состояний во всех трех химических соединениях. Результаты этих расчетов приведены на рис. 5.

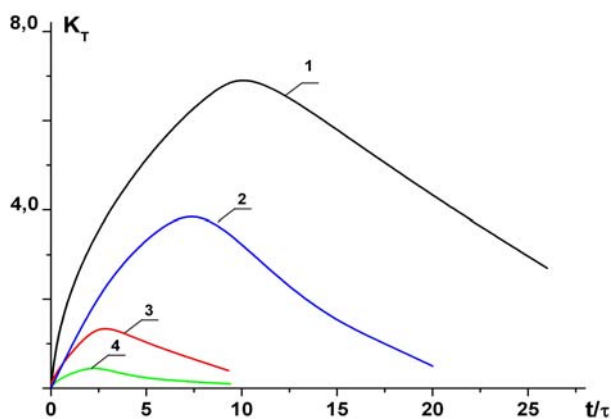


Рисунок 5 – Зависимость коэффициента телепортации квантовых состояний

$K_T = \frac{N_2(t)}{N_2^0} = \frac{A_2(t)}{A_2^0}$  от характеристического времени межкластерной передачи этих состояний и времени спиновой релаксации в образцах гипофосфита натрия.



Здесь  $\frac{N_2}{N_1}$  – разность населенностей квантовых уровней спинового кластера,  $\frac{A_2}{A_1}$  – амплитуды сигналов магнитного резонанса, которые пропорциональны разности населенностей квантовых уровней конкретного спинового кластера.

Таким образом, выполненные нами оценки показывают, что для регистрации эффектов телепортации квантовых состояний в неоднородных наноструктурированных спин-системах, необходимо строго выполнять вышеуказанные условия (13). Так при нарушении этих условий величина эффекта телепортации квантовых состояний будет заметно уменьшаться вплоть до полного своего исчезновения.

#### **Заключение.**

Таким образом, в данном сообщении нами показано, что эффекты телепортации квантовых, спиновых состояний могут наблюдаться и в неоднородных спин-системах, состоящих из неоднотипных спиновых нанокластеров, т.е. различающихся размерами кластеров, временами спиновой релаксации, а также временами межкластерной передачи квантовых состояний. Получены и проверены на экспериментах оптимальные условия регистрации эффекта квантовой телепортации для неоднородных спиновых систем.

#### **Литература**

1. Polyakov A., Bitenbaev M. NMR Study of Transport of Nuclear Spin Polarization in Sodium Hypophosphite. Solid State Sciences, 2009, v.11, p. 945-947.
2. Поляков А.И., Битенбаев М.И. Исследование процессов телепортации квантовых состояний в спиновых структурах. ДАН РК, 2009, №6, с.31-35
3. Nelson et al. Complete quantum teleportation using nuclear magnetic// Nature, 1998, v. 996, p. 52-55
4. Zutie J., Fabian Ja., Sarma S. Spintronics: Fundamentals and applications// Rev. Mod. Phys., 2004. v.76, p. 323-329.

## **ИССЛЕДОВАНИЕ СОДЕРЖАНИЙ МАКРО- И МИКРОЭЛЕМЕНТОВ В ПЛОДООВОЩНОЙ ПРОДУКЦИИ, ЛЕКАРСТВЕННЫХ ТРАВАХ И СБОРАХ**

Бакиев С.А., Кульджанов Б.К., Рахманов Ж., Осинская Н.С., Ахмедов Я., Якубов О.  
Институт ядерной физики Академии наук Республики Узбекистан, Ташкент, Узбекистан

### **ВВЕДЕНИЕ**

Известно, что в организме человека содержится практически вся таблица Менделеева – 81 из 92 макро- и микроэлементов. Избыток или недостаток одного из них приводит к тем или иным заболеваниям и патологическим состояниям, которые объясняются дисбалансом содержания элементов в организме. Это в свою очередь часто является причиной тотальной разбалансировки минерального обмена. Пища является основным источником поступления микроэлементов в организм человека. Поэтому исследование содержания элементов в ней, равно как и в лекарственных травах и сборах, применяемых для лечения различных заболеваний микроэлементного характера, представляет собой особый интерес.

В литературе имеется немало данных по элементному составу продуктов питания, полученные методами нейтронно-активационного анализа. Однако большинство работ выполнено до появления детекторов  $\gamma$ -излучения с высоким энергетическим разрешением. Использование техники на базе полупроводниковых детекторов из высокоочищенного германия с высоким (1.8 кэВ) разрешением существенно улучшило возможности аналитических работ. Так, проведенные нами предварительные исследования показали, что в растительных пробах проявляются линии радионуклидов 35–40 химических элементов. Это предопределило целесообразность разработки соответствующей аналитической методики и проведение многоэлементного анализа широкого круга продуктов питания растительного происхождения, а также лекарственных трав, произрастающих на территории Узбекистана.

### **МЕТОДИКА ИНСТРУМЕНТАЛЬНОГО НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННОГО АНАЛИЗА**

При разработке методики анализа проведен весь цикл необходимых расчетно-методических исследований, включающих в себя выявление перечня определяемых элементов, исследования возможных помех для анализа, выбор аналитических радионуклидов, оптимизацию временных параметров анализа и определение пределов обнаружения элементов.

При нейтронно-активационном определении элементного состава вещества существуют три типа мешающих факторов: конкурирующие ядерные реакции, интерференция (наложение) гамма-линий различных радионуклидов и комптоновский фон от более высокоэнергичных  $\gamma$ -линий, поднимающий пьедестал под аналитической линией определяемого элемента и, тем самым, ухудшающий соотношение сигнал/фон.

Спектр нейтронов ядерного реактора, где облучаются анализируемые образцы, имеет широкий диапазон энергий (от 0 до ~ 15 МэВ), так что, кроме основного ( $n, \gamma$ ), открываются и другие (пороговые) каналы реакций, по которым могут образоваться аналитические радионуклиды от других элементов. Расчеты, проведенные с использованием ядерно-физических констант основных и конкурирующих реакций, показали, что для радионуклидов всех рассматриваемых элементов вклад конкурирующих реакций ничтожно мал и его можно не учитывать. Благодаря высокому разрешению гамма-спектрометрической аппаратуры, случаев наложения линий (интерференции) в пределах

$\pm 2$  кэВ в нашем случае не встречается. Известно, что в спектре  $\gamma$ -излучений аналитические линии многих определяемых элементов находятся на комптоновском пьедестале от более высокоэнергичных линий. Улучшения отношения сигнал/фон можно добиться, только варьируя временные параметры анализа. Этим путем добиваются получения оптимальных параметров анализа при определении конкретных радионуклидов. Однако в нашем случае при проведении одновременного многоэлементного анализа приходится ограничиваться нахождением оптимума не для конкретного радионуклида, а лишь для группы элементов.

Учитывая сказанное выше, мы сгруппировали определяемые элементы на следующие три группы с указанными условиями и режимами анализа:

*Группа 1.* Mg, Cl, I, Mn, Cu, Na, K, при облучении которых тепловыми нейтронами, образуются короткоживущие радионуклиды  $^{27}\text{Mg}$ ,  $^{56}\text{Mn}$ ,  $^{38}\text{Cl}$ ,  $^{128}\text{I}$  и др. с периодами полураспада от нескольких минут до нескольких часов. Оптимальная длительность облучения составляет 15 с при плотности потока нейтронов  $f = 10^{12}$  н/см<sup>2</sup>с в тепловом канале реактора;  $t_{\text{охл}} = 10\text{--}15$  мин. Для определения Cu, Na, K и I  $t_{\text{изм}} = 200$  с. Для определения Mg, Cl, Mn  $t_{\text{изм}} = 50$  с.

*Группа 2.* В эту группу входят среднеживущие нуклиды Ca, Sm, Mo, Lu, U, Yb, Au, As, Nd, Br, La, Cd. Оптимальная длительность облучения составляет 15 часов при плотности потока нейтронов  $f = 10^{13}$  н/см<sup>2</sup>с,  $t_{\text{охл}} = 10$  дней,  $t_{\text{изм}} = 200$  с.

*Группа 3.* Те же пробы (облученные по группе 2) выдерживаются для остывания 30 суток для определения элементов Ce, Se, Hg, Tb, Th, Cr, Hf, Ba, Sr, Ag, Cs, Ni, Sc, Rb, Fe, Zn, Co, Ta, Eu, Sb по долгоживущим нуклидам. Длительность измерений составляет 400–600 с.

Измерения спектров гамма-излучения облученных проб и эталонов (стандартных образцов) проводили на компьютеризированном гамма-спектрометре высокого разрешения фирмы “Canberra”. Перед началом измерений спектрометр настраивали с помощью образцовых гамма-источников (ОСИ). Содержание элементов определяли относительным методом путем сравнения активности радионуклида определяемого элемента с активностью того же элемента в эталоне или в стандартном образце. Основные операции по обработке  $\gamma$ -спектров проводили с помощью пакета программ Genie-2000, который управляет процессом измерений, проводит калибровку  $\gamma$ -спектра, определяет энергии  $\gamma$ -линий, вычисляет их интенсивности (площади под аналитической линией) и статистическую погрешность определения интенсивности линии. По энергиям гамма-линий проводится однозначная идентификация радионуклидов химических элементов. По полученным интенсивностям гамма-линий пробы и эталона оператор проводит вычисление содержаний элементов в пробах.

Разработанная методика позволила определить около 40 элементов в пробах растительного происхождения с пределами обнаружения, указанными в табл. 1. Там же приведены ядерно-физические характеристики, определяемых элементов. В зависимости от мешающих факторов пределы обнаружения могут отличаться на порядок.

Достоинствами разработанной методики являются многоэлементность и высокая чувствительность определения большого круга элементов.

### ПОДГОТОВКА ПРОБ

Исследуемые лекарственные травы в основном приобретали в высушенном виде в аптеках, у частных продавцов (специализирующихся на сборе и продаже лекарственных трав), а овощи, фрукты и некоторые травы – в естественном (не высушенном) виде. При приобретении проб по возможности устанавливали место их произрастания.

Отобранные пробы тщательно промывали сначала водопроводной водой, а затем дважды дистиллированной водой. Затем пробы разрезали на мелкие кусочки и сушили в сушильном шкафу при температуре 60 °С. Высушенные пробы измельчали в фарфоровой ступке и пропускали через сито, которые, как правило, досушивали под лампой до постоянного веса. Из этих измельченных проб готовили навески по 100 мг для облучения на реакторе.

**Таблица 1.** Ядерно-физические характеристики определяемых элементов и их радионуклидов.

№	Группа	Элемент	Образующийся радионуклид	Период полураспада $T_{1/2}$	Энергия $\gamma$ -квантов аналитической линии, кэВ	Предел обнаружения, мг/кг (%)
1	Коротко-живущие нуклиды	Mg	Mg-27	9.46 мин.	843.8; 1014.4	100 ( $10^{-2}$ )
2		Cl	Cl-38	37.2 мин.	1642.4	10 ( $10^{-3}$ )
3		I	I-128	25.0 мин.	442.9	0.1 ( $10^{-5}$ )
4		Mn	Mn-56	2.58 час.	846.7; 1810.7	1 ( $10^{-4}$ )
5		Cu	Cu-64	12.8 час.	511-аннигил.	1 ( $10^{-4}$ )
6		Na	Na-24	15 час.	1368.6	1 ( $10^{-4}$ )
7		K	K-42	12.4 час.	1524.7	10 ( $10^{-3}$ )
8	Средне-живущие нуклиды	Ca	Ca-47→Sc-47	3.35 дн.	159.4	100 ( $10^{-2}$ )
9		Sm	Sm-153	1.94 дн.	103.2	0.0001 ( $10^{-8}$ )
10		Mo	Mo-99	2.75 дн.	140.5; 739.4	0.1 ( $10^{-5}$ )
11		Lu	Lu-177	6.71 дн.	208.4; 113.0	0.001 ( $10^{-7}$ )
12		U	U-239→Np-239	2.36 дн.	228.2	0.1 ( $10^{-5}$ )
13		Yb	Yb-175	4.19 дн.	396.3	0.01 ( $10^{-6}$ )
		Yb	Yb-169	32.0 дн.	198.0	0.01 ( $10^{-6}$ )

*Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry*

14		Au	Au-198	2.69 дн.	411.8	0.0001(10 <sup>-8</sup> )
15		As	As-76	1.10 дн.	558.4; 657.0	0.01(10 <sup>-6</sup> )
16		Nd	Nd-147	11 дн.	531.0; 91.1	~0.1(10 <sup>-5</sup> )
17		Br	Br-82	1.47 дн.	554.3; 776.5	0.01(10 <sup>-6</sup> )
18		La	La-140	1.68 дн.	1596.5	0.001(10 <sup>-7</sup> )
19		Cd	Cd-115	2.23 дн.	527.9	0.1(10 <sup>-5</sup> )
		Cd	In-115m	4.49 час.	336.2	0.1(10 <sup>-5</sup> )
20		Ce	Ce-141	32.5 дн.	145.4	0.01(10 <sup>-6</sup> )
21		Se	Se-75	120 дн.	264.6	0.01(10 <sup>-6</sup> )
22		Hg	Hg-203	46.6 дн.	279.2	0.001(10 <sup>-7</sup> )
23		Tb	Tb-160	72.3 дн.	298.6	0.001(10 <sup>-7</sup> )
24		Th	Th-233→Pa-233	27.0 дн.	311.9	0.001(10 <sup>-7</sup> )
25		Cr	Cr-51	27.7 дн.	320.1	0.01(10 <sup>-6</sup> )
26		Hf	Hf-181	42.4 дн.	482.2	0.001(10 <sup>-7</sup> )
27		Ba	Ba-131	11.8 дн.	496.3	1(10 <sup>-4</sup> )
28		Sr	Sr-85	64.8 дн.	514.0	1(10 <sup>-4</sup> )
29	Долго- живущие нуклиды	Ag	Ag-110m	250 дн.	657.8	0.001(10 <sup>-7</sup> )
30		Ni	(n,p) Co-58	70.8 дн.	810.8	1(10 <sup>-4</sup> )
31		Cs	Cs-134	2.06 г	795.8	0.001(10 <sup>-7</sup> )
32		Sc	Sc-46	83.8 дн.	889.3	0.0001(10 <sup>-8</sup> )
33		Rb	Rb-86	18.7 дн.	1076.6	0.1(10 <sup>-5</sup> )
34		Fe	Fe-59	44.5 дн.	1099.2	1(10 <sup>-4</sup> )
35		Zn	Zn-65	244 дн.	1115.5	0.1(10 <sup>-5</sup> )
36		Co	Co-60	5.27 г	1173.2; 1332.5	0.001(10 <sup>-7</sup> )
37		Ta	Ta-182	27.1 дн.	1221.4; 1231.0	0.001(10 <sup>-7</sup> )
38		Eu	Eu-152	13.6 г	1408; 121.8	0.001(10 <sup>-7</sup> )
39		Sb	Sb-124	60.2 дн.	1691.0	0.001(10 <sup>-7</sup> )

Объекты исследование были разбиты на группы:

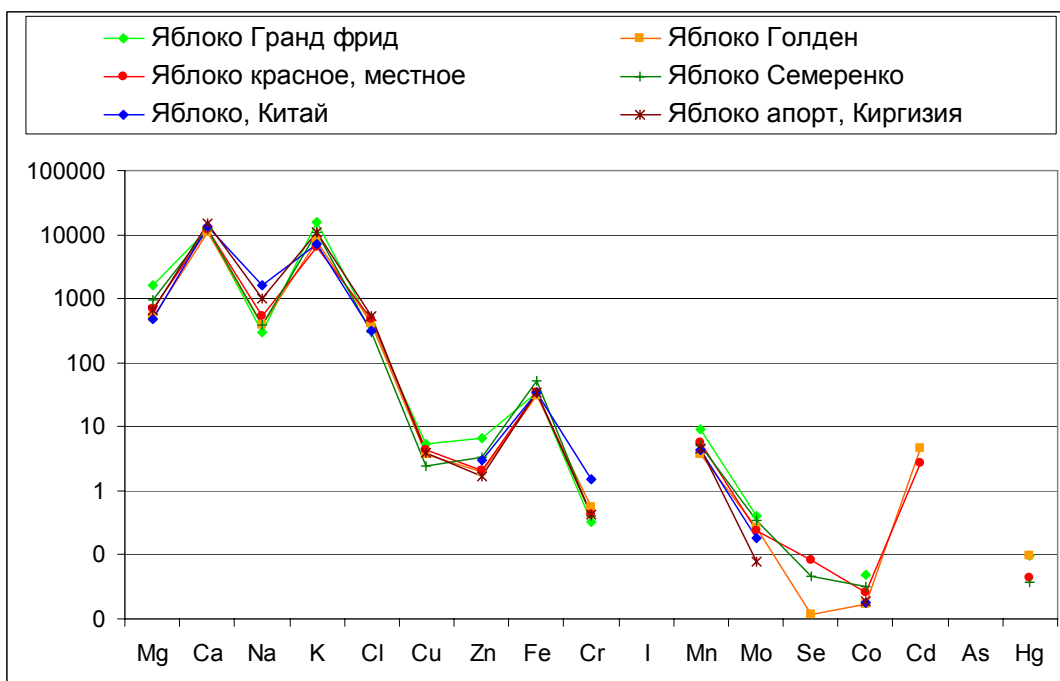
- Овощи
- Фрукты
- Сухофрукты
- Цитрусовые
- Ягоды
- Орехи
- Семена
- Салатные травы
- Лекарственные травы и сборы
- Чай
- Средства народной медицины
- Некоторые продукты питания

Проведены количественные анализы растительных проб на вышеуказанные элементы. В целом проанализировано около 200 наименований растений и плодовоовощных продуктов, а с учетом анализа различных частей растений – около 400 проб, или 16 000 элементоопределений.

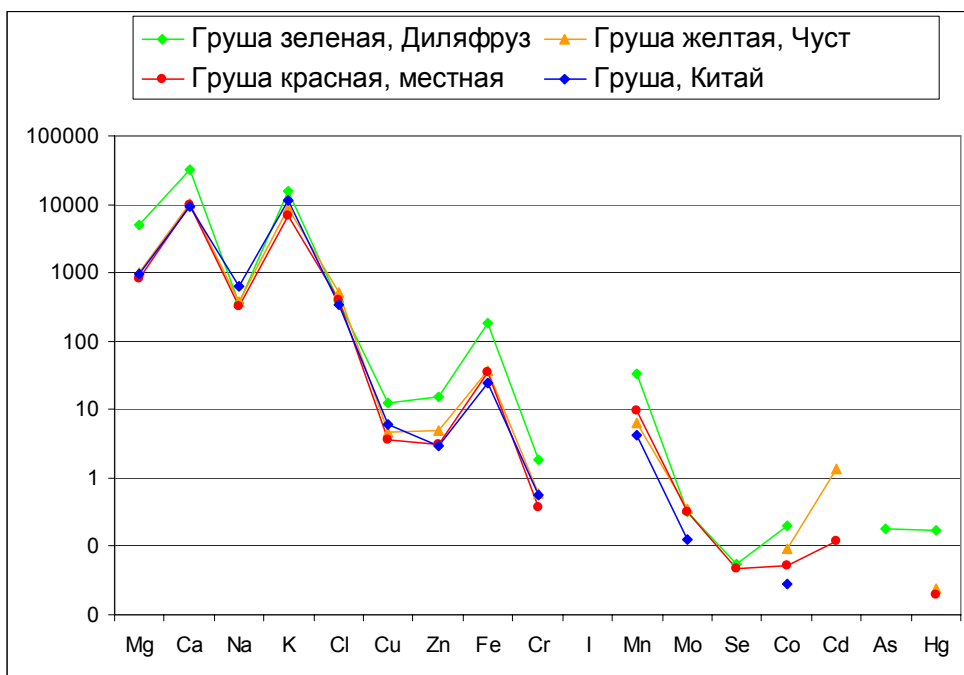
В качестве иллюстративного материала ниже приводятся:

- Распределение некоторых элементов в зависимости от сорта продукта, места прорастания, а также распределение по частям растений;
- Диаграммы максимальных содержаний жизненно важных элементов.

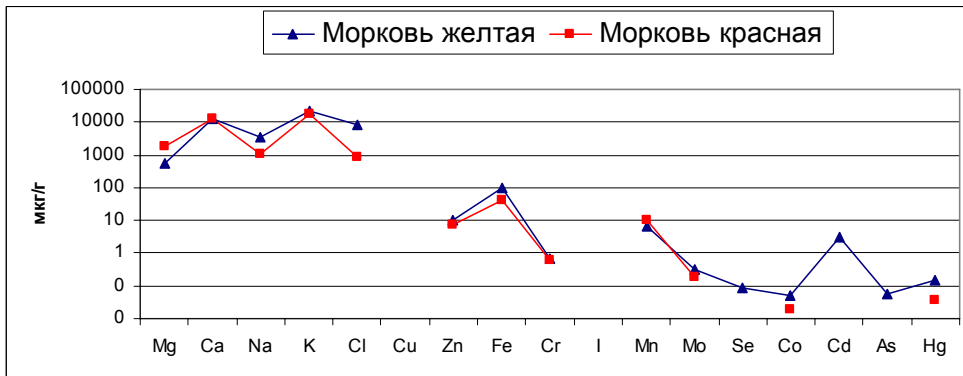
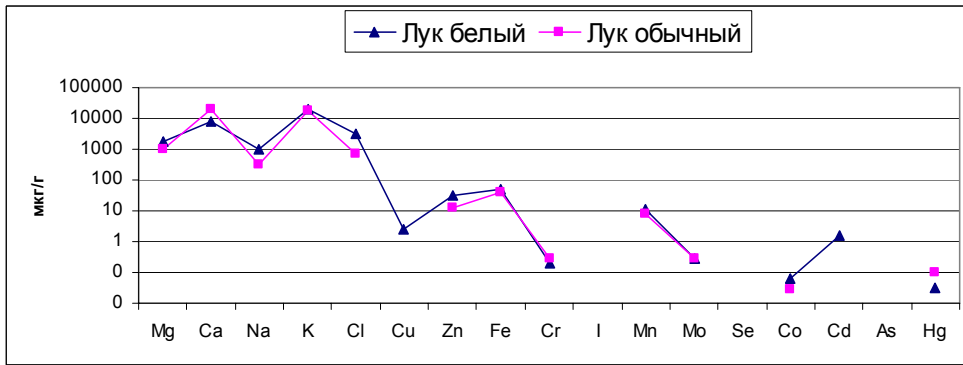
РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ СОРТА ПРОДУКТА



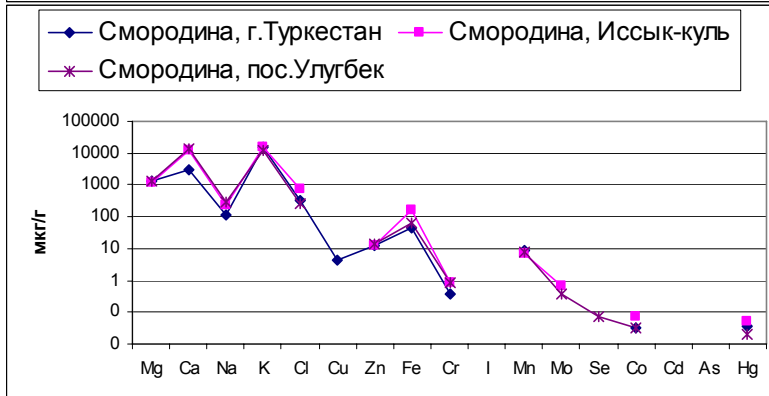
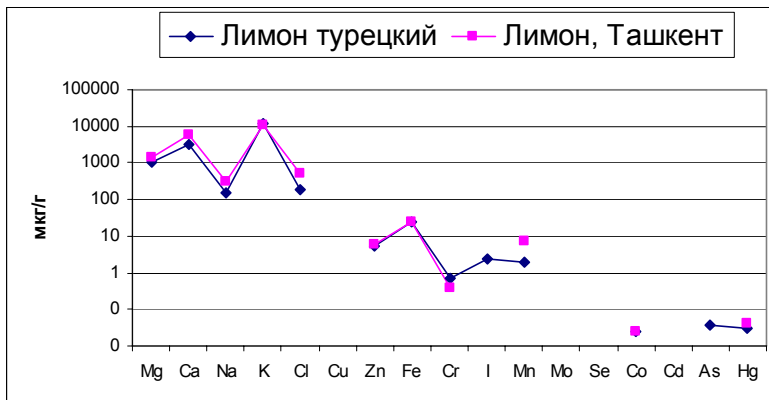
РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ СОРТА ПРОДУКТА



РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ СОРТА ПРОДУКТА



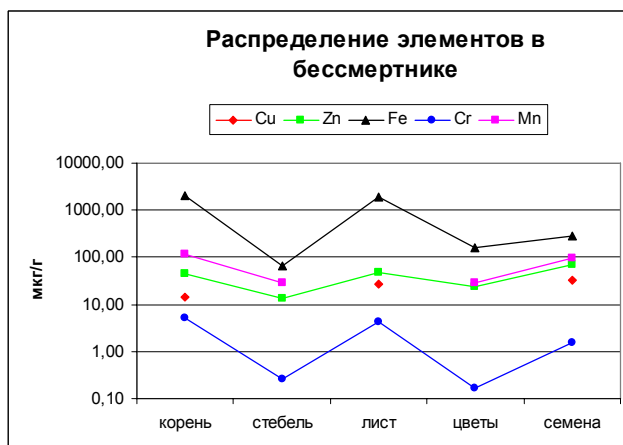
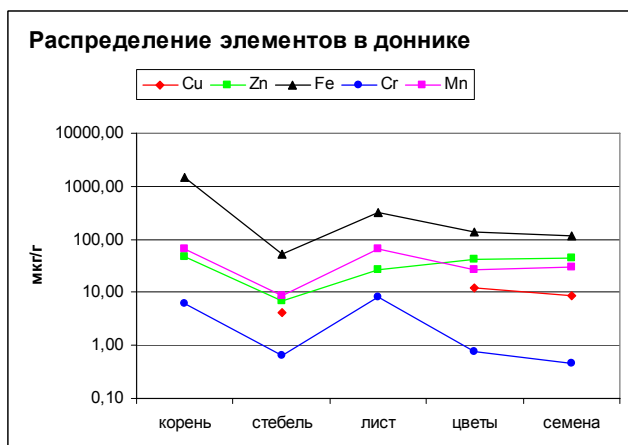
РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ МЕСТА ПРОИЗРАСТАНИЯ ПРОДУКТА



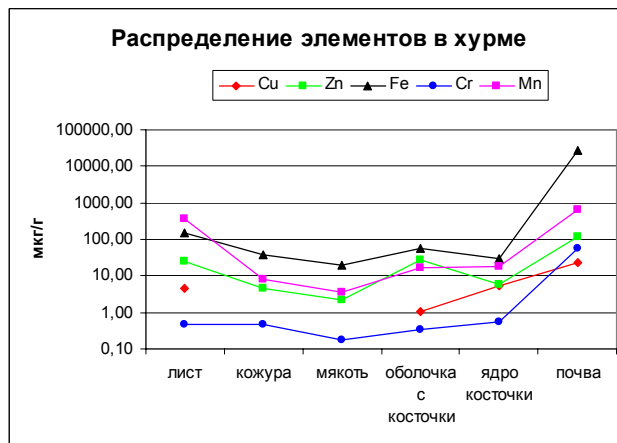
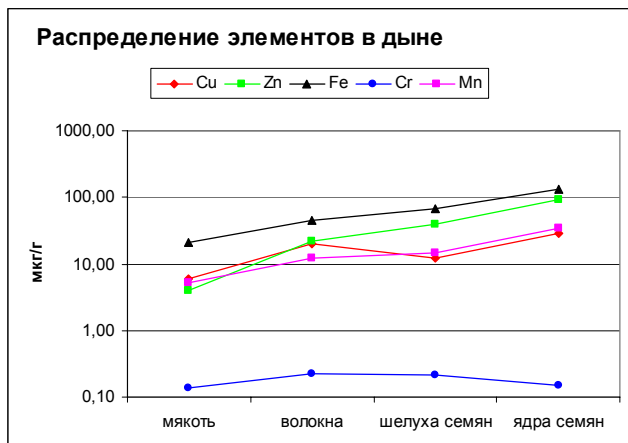
РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ В ЗАВИСИМОСТИ ОТ МЕСТА ПРОИЗРАСТАНИЯ ПРОДУКТА



РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПО ЧАСТЯМ РАСТЕНИЙ



РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ПО ЧАСТЯМ РАСТЕНИЙ





**КОЭФФИЦИЕНТЫ БИОЛОГИЧЕСКОГО ПОГЛОЩЕНИЯ**

Для хурмы были рассчитаны коэффициенты биологического поглощения (КБП) - отношения концентрации элемента в растительном материале к концентрации его в почве. Если значение КБП элемента выше единицы, то данные части растения рассматриваются как концентраторы данного элемента.

**Таблица 2.** Коэффициенты биологического поглощения в частях хурмы.

КБП	Mg	Ca	Na	K	Cu	Zn	Fe	Cr	Mn	Mo	Co	As
лист	0.44	7.25	0.09	0.77	0.19	0.22	0.01	0.01	0.57	0.15	0.01	0.02
ядро	0.09	1.09	0.11	0.83	0.23	0.05	0.01	0.01	0.03	0.14	0.01	0.01
кожура	0.07	1.11	0.12	1.94	0.01	0.04	0.01	0.01	0.01	0.15	0.01	0.01
мякоть	0.04	0.75	0.11	1.95	0.01	0.02	0.01	0.01	0.01	0.06	0.01	0.01

Т.о., почти все составные части хурмы можно считать концентраторами кальция, а мякоть и кожуру - концентраторами калия.

**Таблица 3. Формула оптимального питания взрослого человека<sup>1</sup>**

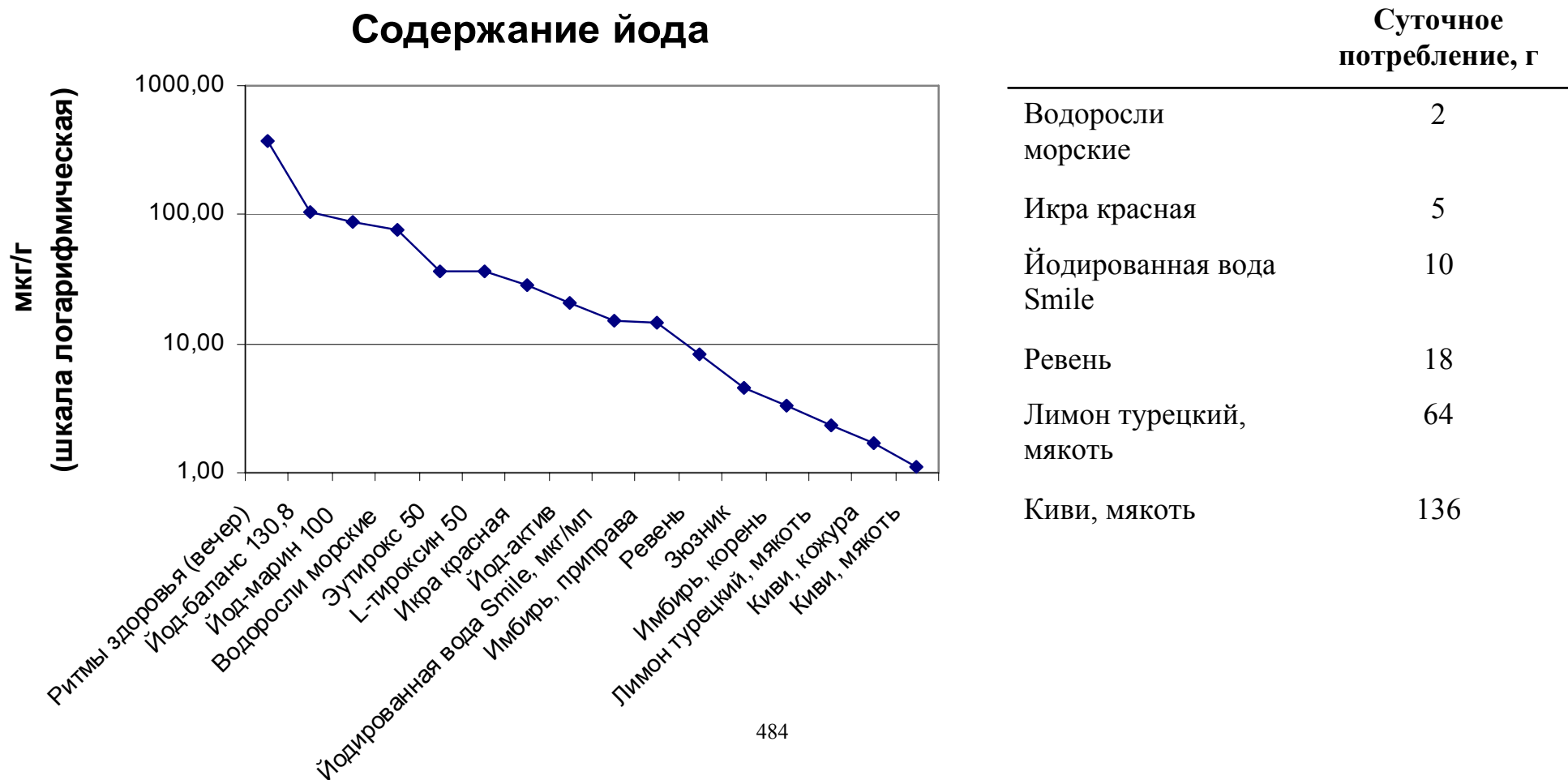
(по МУК 2.3.2.-03 Пищевые продукты и пищевые добавки. Рекомендуемые физиологические нормы потребностей и адекватные уровни поступления с пищей микронутриентов и других минорных биологически активных компонентов пищи. Введены МЗ РФ с 01.08.2003).

	Адекватный уровень потребления	Верхний допустимый уровень потребления
<b>Макроэлементы</b>		
Кальций	1250 мг	2500 мг
Фосфор	800 мг	2000 мг
Магний	400 мг	800 мг
Калий	1000 мг	2500 мг
<b>Микроэлементы</b>		
Железо	15мг	45мг
Цинк	12 мг	40мг
Иод	150 мкг	1100 мкг
Селен	55 мкг	400 мкг
Медь	1мг	5мг
Молибден	45 мкг	200 мкг
Хром	30 мкг	100 мкг
Марганец	2 мг	11 мг
Фтор	3мг	10 мг
Никель	250 мкг	700 мкг
Ванадий	40 мкг	100 мкг
Бор	2мг	6мг
Кремний	10 мг	20 мг
Германий	0,4 мг	1,0 мг
Кобальт	10 мкг	30 мкг
Алюминий	5мг	15мг
Бром	2мг	4мг
Литий	100 мкг	300 мкг
Олово	100 мкг	200 мкг

<sup>1</sup> А.В.Скальный, И.А.Рудаков. Биоэлементы в медицине. М., «Мир», 2004

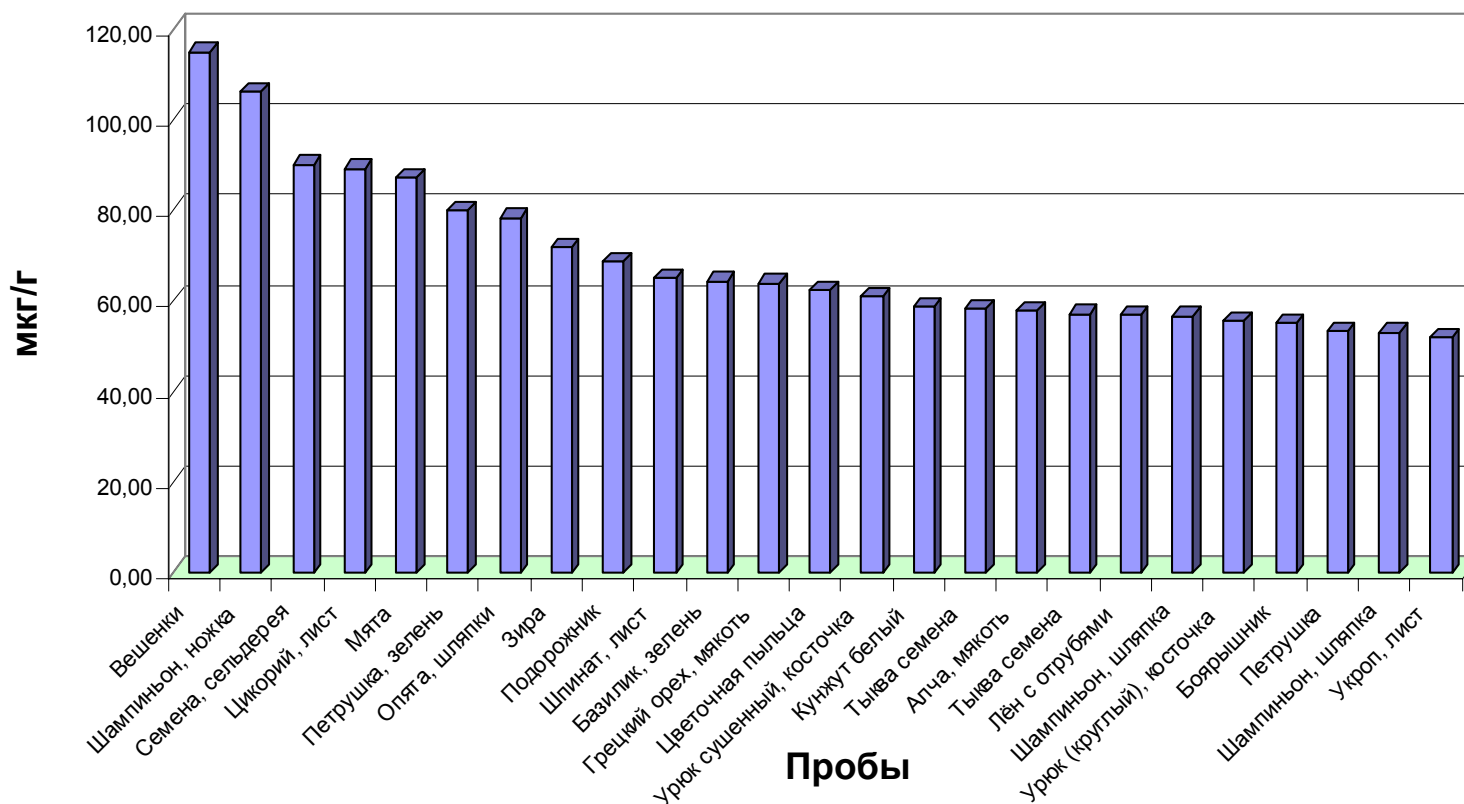
# СОДЕРЖАНИЕ ЙОДА В РЯДЕ ПРОБ И РЕКОМЕНДУЕМОЕ СУТОЧНОЕ ПОТРЕБЛЕНИЕ В ГРАММАХ

(суточное потребление рассчитывается как отношение адекватного уровня поступления элемента в организм к его содержанию в пробе)



# Содержание цинка в растительных пробах и суточное потребление продуктов для удовлетворения нормы поступления в организм

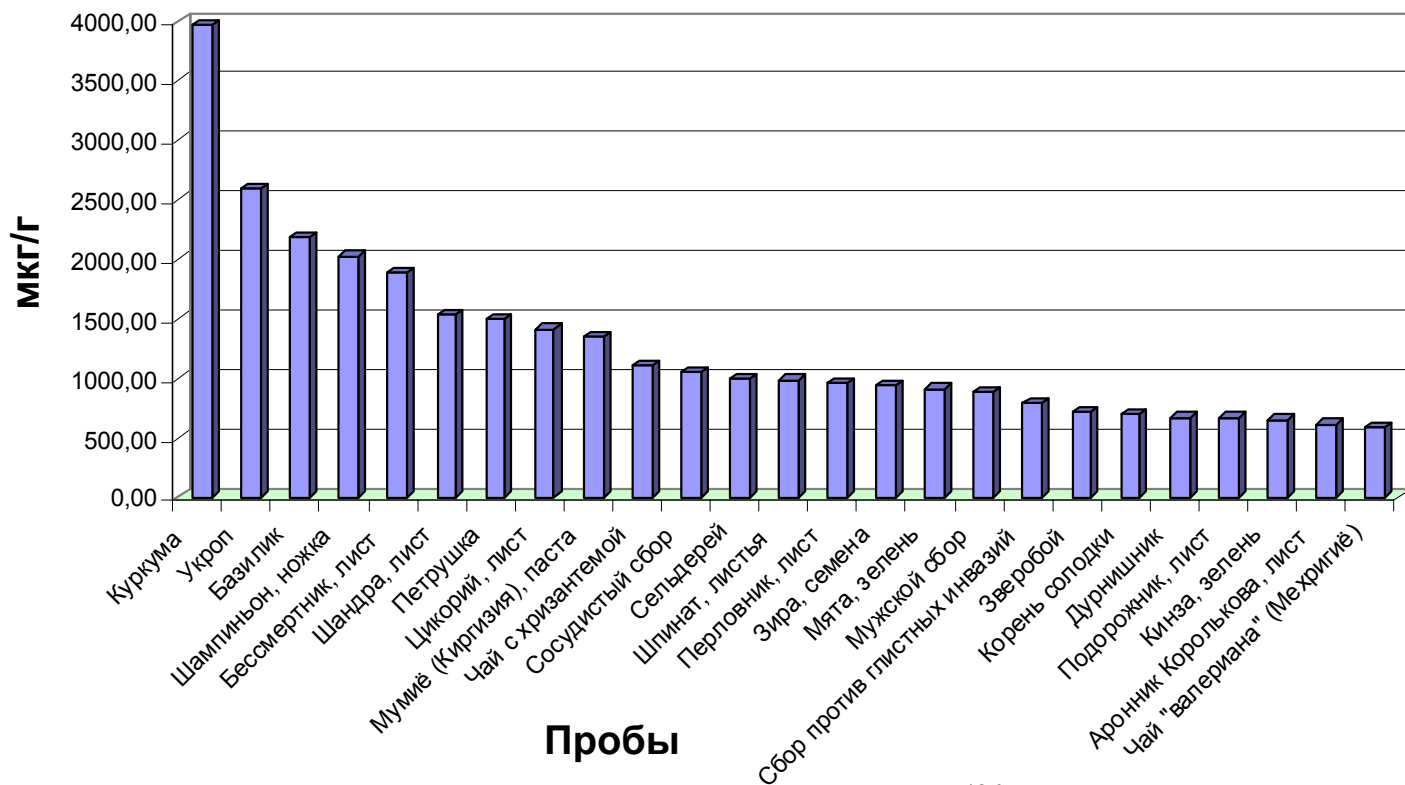
## Содержания цинка



	Суточное потребление, Г
Вешенки	104
Шампиньон, ножка	113
Семена, сельдерея	133
Цикорий, лист	135
Мята	138
Петрушка, зелень	150
Опята, шляпки	153
Зира	167
Подорожник	175
Шпинат, лист	185

## Содержание железа в растительных пробах и суточное потребление продуктов для удовлетворения нормы поступления в организм

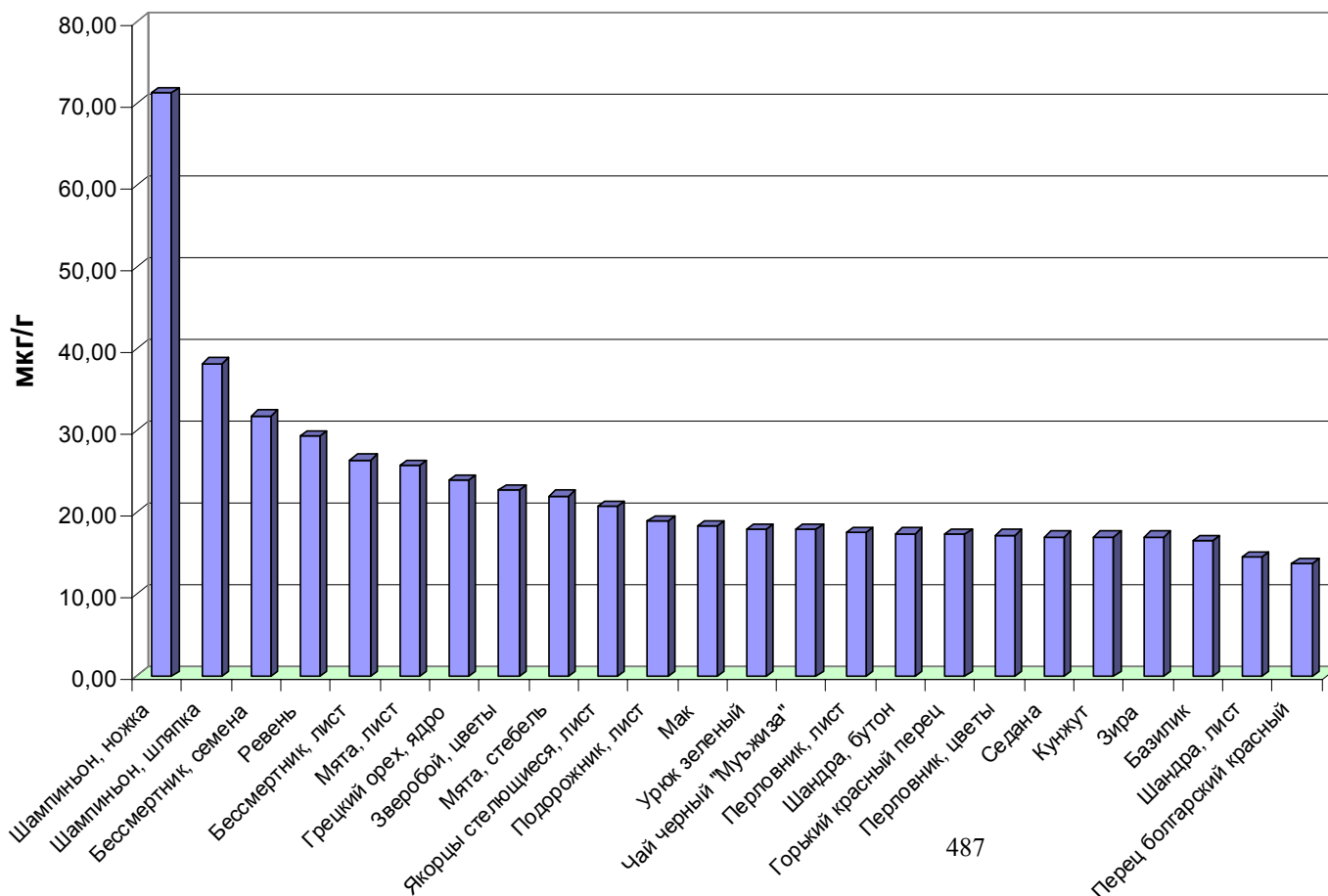
### Содержание железа



	Суточное потребление, г
Куркума	4
Укроп	6
Бasilik	7
Шампиньон, ножка	7
Бессмертник, лист	8
Шандра, лист	10
Петрушка	10
Цикорий, лист	11
Мумиё (Киргизия), паста	11
Чай с хризантемой	14
Сосудистый сбор	14
Сельдерей	15

# Содержание меди в растительных пробах и суточное потребление продуктов для удовлетворения нормы поступления в организм

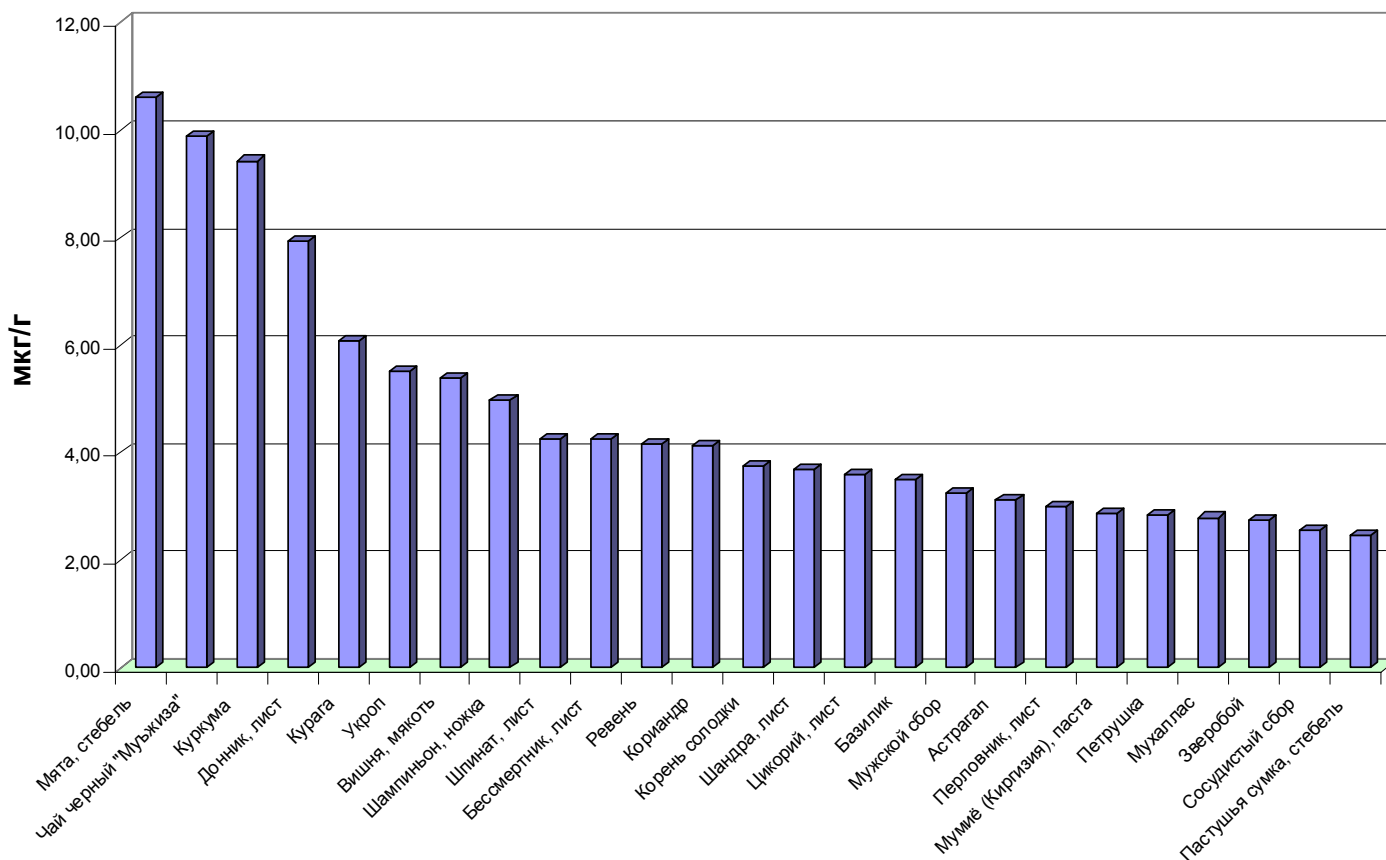
## Содержание меди



	Суточное потребление, г
Шампиньон, ножка	14
Шампиньон, шляпка	26
Бессмертник, семена	31
Ревень	34
Бессмертник, лист	38
Мята, лист	39
Грецкий орех, ядро	42
Зверобой, цветы	44
Мята, стебель	45
Якорцы стелющиеся, лист	48
Подорожник, лист	53
Мак	55

## Содержание хрома в растительных пробах и суточное потребление продуктов для удовлетворения нормы поступления в организм

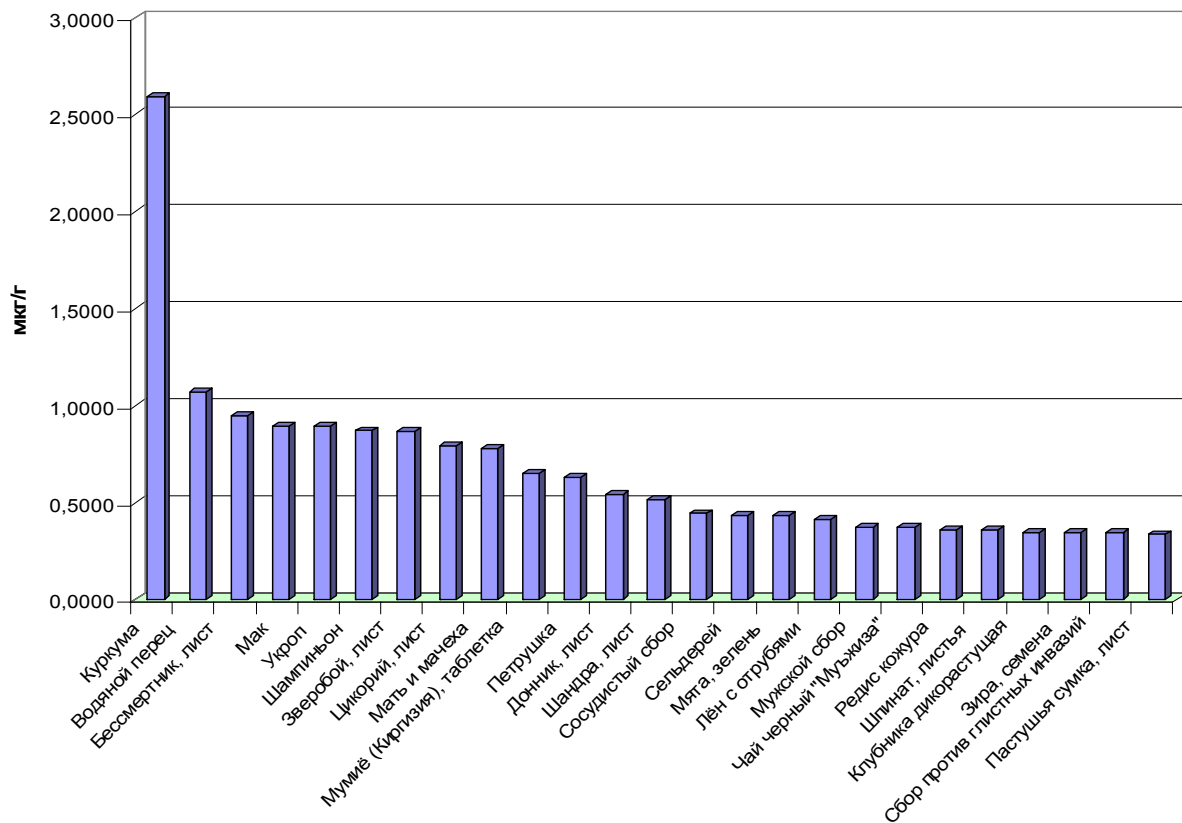
**Содержания хрома**



	Суточное потребление, г
Мята, стебель	3
Чай черный "Мужиза"	3
Куркума	3
Донник, лист	4
Курага	5
Укроп	5
Вишня, мякоть	6
Шампиньон, ножка	6
Шпинат, лист	7
Бессмертник, лист	7
Ревень	7
Кориандр	7

## Содержание кобальта в растительных пробах и суточное потребление продуктов для удовлетворения нормы поступления в организм

**Содержание кобальта**



	Суточное потребление, г
Куркума	4
Водяной перец	9
Бессмертник, лист	11
Мак	11
Укроп	11
Шампиньон	11
Зверобой, лист	12
Цикорий, лист	13
Мать и мачеха	13
Мумиё (Киргизия), таблетка	15
Петрушка	16



**Таблица 4.** Некоторые жизненно важные элементы, их роль и продукты, их содержащие

<b>Элемент</b>	<b>Действие</b>	<b>Продукты</b>
<b>Йод</b>	регулирует активность щитовидной железы, деятельность мозга, скорость биохимических реакций, процессы роста и развития организма; повышает потребление кислорода тканями; профилактика ожирения и атеросклероза.	морепродукты, БАДы, фармпрепараты, имбирь, лимон турецкий, киви
<b>Цинк</b>	антиоксидант; укрепляет иммунитет, волосы, кожу, кости и ногти; участвует в синтезе гормона инсулина, в выработке тестостерона; обладает рано- и язвозаживляющим действием; участвует в процессах вкусового восприятия и обоняния; необходим для функционирования центральной нервной системы, в т.ч. для процессов запоминания.	вешенки, шампиньоны, мята, петрушка, опята, шпинат, грецкий орех, косточки абрикоса, семена тыквы, боярышник
<b>Хром</b>	участвует в регуляции синтеза жиров и обмена углеводов, работы сердечной мышцы и функционирования кровеносных сосудов; вместе с инсулином (регулятор уровня сахара в крови) обеспечивает нормальную активность инсулина; входит в состав низкомолекулярного органического комплекса, обеспечивающего поддержание нормального уровня глюкозы в крови.	мята, чай черный «Мужиза», курага, укроп, вишня, шампиньоны, шпинат, базилик, петрушка
<b>Железо</b>	участвует в синтезе гемоглобина, в процессах выделения энергии, в ферментативных реакциях, в обеспечении иммунных функций, в метаболизме холестерина; способствует обезвреживанию вредных веществ в печени; является составной частью многих ферментов и протеинов тела, в том числе участвующих в синтезе ДНК; укрепляет кожу, волосы и ногти.	укроп, базилик, шампиньоны, петрушка, шпинат, мята
<b>Медь</b>	укрепляет волосы и кровеносные сосуды; улучшает внешний вид кожи; участвует в синтезе тироксина, эритроцитов, коллагена, женских половых гормонов; предупреждает развитие артрозов и артритов, искривление позвоночника; присутствует в системе антиоксидантной защиты организма; способствует проведению нервного импульса обладает выраженным противовоспалительным свойством, смягчает проявления аутоиммунных заболеваний.	шампиньоны, ревень, мята, грецкий орех, красный болгарский перец
<b>Кобальт</b>	активно участвует в ферментативных процессах и образовании гормонов щитовидной железы, угнетает обмен йода, способствует выделению воды почками, повышает усвоение железа и синтез гемоглобина. Процесс кроветворения у человека и животных может осуществляться только при нормальном взаимодействии трех биоэлементов – кобальта, меди и железа.	укроп, шампиньоны, петрушка, сельдерей, мята, шпинат, пастушья сумка

**Таблица 4.** Некоторые жизненно-важные элементы, их роль и продукты, их содержащие (продолжение)

<b>Кальций</b>	обеспечивает формирование костной ткани, регуляцию внутриклеточных процессов, проницаемость клеточных мембран, нервную проводимость, поддержку стабильной сердечной деятельности и т.д.	БАДы, подорожник, мать-и-мачеха, алтей, кинза, донник, крапива, шпинат, алча
<b>Калий</b>	поддерживает постоянство состава клеточной и межклеточной жидкости, кислотно-щелочное равновесие, нервно-мышечную возбудимость и проводимость, водно-солевой баланс, осмотическое давление, кровяное давление на нормальном уровне; обеспечивает межклеточные контакты, биоэлектрическую активность клеток; участвует в нервной регуляции сердечных сокращений, в обеспечении выделительной функции почек; катализатор при обмене углеводов и белков.	шпинат, укроп, кинза, петрушка, мята, пастушья сумка, шампиньоны, алча, свекла, сельдерей, редька
<b>Марганец</b>	компонент множества ферментов; укрепляет сосуды, регулирует кроветворение; обеспечивает стабильность структуры клеточных мембран, нормальное функционирование мышечной ткани, участвует в обмене гормонов щитовидной железы (тироксин), в регуляции обмена витаминов С, Е, группы В, холина, меди, в обеспечении полноценной репродуктивной функции; усиливает гипогликемический эффект инсулина; повышает интенсивность	чай зеленый и чай черный «Мужиза», грецкий орех, укроп, ревень, кинза, сельдерей, петрушка, мята, чернослив, помидор юсуповский

	утилизации жиров; снижает уровень липидов в организме; необходим для нормального роста и развития организма. Дефицитом марганца сопровождаются бронхиальная астма, хронический аллергический ринит, синусит, неврастения со склонностью к депрессии.	
<b>Селен</b>	входит в состав большинства гормонов и ферментов и связан со всеми органами и системами организма человека; выполняет многочисленные защитные функции в организме: защищает сердце и сосуды, замедляет процессы старения, укрепляет иммунитет, антиоксидант; антагонист ртути и мышьяка, способен защитить организм от кадмия, свинца, таллия.	шампиньоны, сельдерей, укроп, топинамбур

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

1. Разработана новая высокочувствительная нейтроноактивационная методика анализа растительных проб с определением в одной пробе до 40 химических элементов.
2. Проведен анализ более 200 наименований продуктов растительного происхождения.
3. Получен большой массив новой аналитической информации, существенно пополняющий банк научных данных по элементному составу растительных проб.
4. Институт ядерной физики АН РУз готов рассмотреть вопрос о целесообразности использования данной методики анализа для проведения совместных работ, в том числе, выполнения совместных научных проектов по фундаментальным и прикладным исследованиям.

### КЛИНИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПРЕПАРАТА «НАТРИЯ ПЕРТЕХНЕТАТ-<sup>99m</sup>Tc, РАСТВОР ДЛЯ ИНЪЕКЦИЙ» ИЗ ТРАНСПОРТИРУЕМОГО ГЕЛЬ-ГЕНЕРАТОРА ПРОИЗВОДСТВА ИЯФ НЯЦ РК

<sup>1</sup>И.Т.Тажединов, О.Г. Хан, <sup>2</sup>Е.Т. Чакрова, <sup>2</sup>В.И. Банных

<sup>1</sup>Казахский НИИ онкологии и радиологии, <sup>2</sup>Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Производство радиофармацевтических препаратов и промышленной радиоизотопной продукции имеют принципиально важное значение для социально-экономического развития Республики Казахстан.

Несмотря на появившиеся в последнее время новые методы диагностики и разработку новых радиоизотопов, <sup>99m</sup>Tc, по-прежнему, остается самым востребованным диагностическим радиофармпрепаратом в медицине.

В 2001 году в ИЯФ НЯЦ РК была внедрена гель-технология и создан централизованный гель-генератор <sup>99m</sup>Tc оригинальной конструкции для обеспечения раствором <sup>99m</sup>Tc г.Алматы [2]. За прошедшее время в лечебные центры г. Алматы было поставлено Гбк Качество <sup>99m</sup>Tc регламентировалось ФС 42-. Результаты проверки качества препарата показали полное соответствие требованиям ФС.

Однако <sup>99m</sup>Tc, получаемый из стационарного генератора, имеет ограниченный срок годности и не может быть доставлен в другие города Казахстана. Тем более создание в г. Астане Республиканского Диагностического Центра с радионуклидной лабораторией потребовало разработки технологии производства транспортируемых гель-генераторов <sup>99m</sup>Tc.

В настоящее время в ИЯФ НЯЦ РК организован выпуск транспортируемых гель-генераторов <sup>99m</sup>Tc. На рис.1 представлен внешний вид транспортируемого гель-генератора <sup>99m</sup>Tc.



Рис.1 Внешний вид транспортируемого гель-генератора

Казахский НИИ онкологии и радиологии является одним из главных потребителей РФП  $^{99m}\text{Tc}$ , поэтому там проводилось клиническое испытание препарата «Натрия пертехнетат -  $^{99m}\text{Tc}$ , раствор для инъекций», полученного из транспортируемого геля-генератора  $^{99m}\text{Tc}$ .

**Задачи исследования:**

Провести радионуклидные исследования разных органов (щитовидной железы, печени, почек, скелета) с РФП  $^{99m}\text{Tc}$ , полученными из транспортируемого и стационарного генераторов, и сравнить качество визуализации с испытываемым и референтным препаратами.

Оценить безопасность применения препарата, наблюдая в динамике за пациентами испытываемой и контрольной групп в течение двух часов.

**Материал и методы**

Исследования проводились по стандартизированным методикам на двухдетекторной гамма-камере PHILIPS FORTE.

На исследования каждого органа набиралось две группы по 5 пациентов, которым вводился референтный и испытываемый препарат  $^{99m}\text{Tc}$ , специфичный к тому или иному органу, проводилась сцинтиграфия на гамма-камере и давалась сравнительная оценка их информативности.

Всем пациентам препараты вводились внутривенно в общепринятых дозах. Пациенты в течение двух часов находились под наблюдением врача и медицинских сестер лаборатории. У всех пациентов непосредственно во время введения РФП и на протяжении исследования, а также в ближайшие 2 часа наблюдения никаких изменений в состоянии и внешних проявлений болезни не наблюдалось.

На рис.2 представлен внешний вид гамма-камеры PHILIPS FORTE.



Рисунок 2. Общий вид гамма-камеры PHILIPS FORTE

**Результаты и обсуждение**

**1. Сцинтиграфия щитовидной железой.**

Исследование щитовидной железы проводилось введением растворов натрия пертехнетата -  $^{99m}\text{Tc}$ , активностью 70-100 МБк, полученными из транспортируемого и стационарного генераторов.  $^{99m}\text{Tc}$ , как аналог йода, обладает тиреотропным свойством и включается в коллоид, повторяя только неорганическую фазу йодного обмена. В органической фазе, т. е. в синтезе тиреоидных гормонов он не участвует. По уровню включения  $^{99m}\text{Tc}$  можно оценить функцию включения тиреотропных препаратов щитовидной железы.

В норме при состоянии эутиреоза уровень накопления  $^{99m}\text{Tc}$  колеблется в пределах от 0,5 до 2,0% от попавшей в организм пациента, радиоактивного препарата.

На рис. 3 приведена сцинтиграмма пациентки, полученная через 15 минут после внутривенного введения 85 МБк  $^{99m}\text{Tc}$ -пертехнетата из транспортируемого генератора. Накопление препарата 1%, в пределах нормы. На сцинтиграмме фон тела относительно чистый на фоне четкой визуализации щитовидной железы, что показывает высокую тропность препарата в отношении щитовидной железы и отсутствия других нежелательных эффектов включения – тропности к другим органам и системам.

Анализировались результаты клинических радионуклидных исследований с  $^{99m}\text{Tc}$ -пертехнетатом из транспортируемого и стационарного генераторов и сравнивалось качество визуализации щитовидной железы с испытываемым и референтным препаратами. По качественным и количественным показателям сцинтиграфии щитовидной железы, получены высоко информативные результаты, с достаточно надежной формулировкой заключения исследования.

Исследования щитовидной железы на гамма-камере PHILIPS FORTE с применением «Раствора натрия пертехнетата  $^{99m}\text{Tc}$ » из переносного геля-генератора  $^{99m}\text{Tc}$  свидетельствуют о высокой тиреотропности препарата.

Thyroid Uptake Report

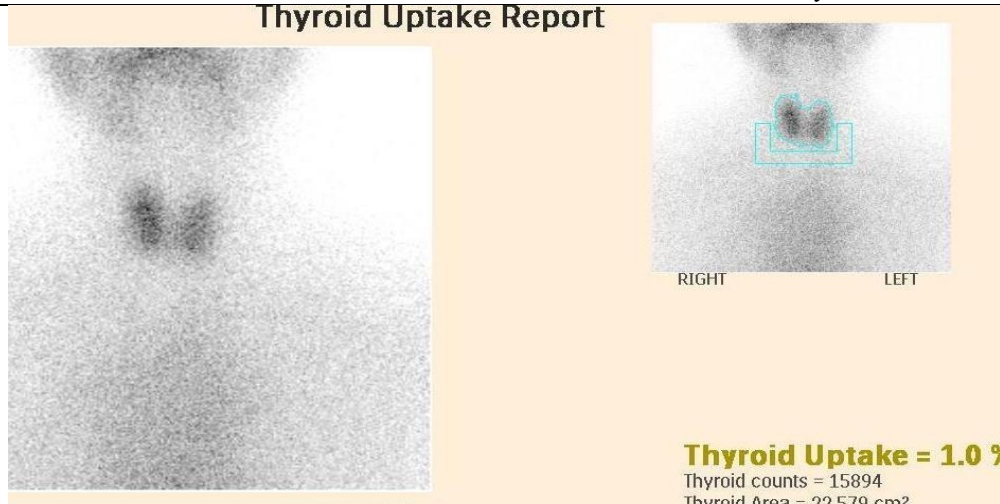


Рисунок 3. Сцинтиграмма щитовидной железы

**II Статическая сцинтиграфия печени.**

Для исследования других органов- печени, почек, скелета применяются наборы реагентов для мечения  $^{99m}\text{Tc}$ , с помощью которых доставляется  $^{99m}\text{Tc}$  к определенному органу. Для статической сцинтиграфии печени широко применяются меченые радионуклидами коллоиды, которые при внутривенном введении захватываются РЭС клетками печени. Использован реагент технефит производства «Радиопрепарат» (Ташкент, Узбекистан), меченый «Натрия пертехнетат  $^{99m}\text{Tc}$ , раствор для инъекций» из переносного и стационарного гель-генераторов.

Сцинтиграфия печени проводилась через 30-40 минут после внутривенного введения 185-250 МБк  $^{99m}\text{Tc}$ -технефита в объеме 0,5-1,0 мл. После проведения сцинтиграфии пациент в течение еще двух часов находится под наблюдением в лаборатории.

На сцинтиграммах четко визуализировалась печень (рис. 3), обычного расположения, нормального размера, с четкими контурами, ровными краями и равномерным распределением препарата. Такое изображение органа (рис.3) получается при введении качественного препарата и здоровой печени у пациента. Это показывает высокую чистоту  $^{99m}\text{Tc}$ -пертехнетата, полученного от транспортируемого генератора, а значит высокую тропность ими меченого  $^{99m}\text{Tc}$ -технефита в отношении печени.

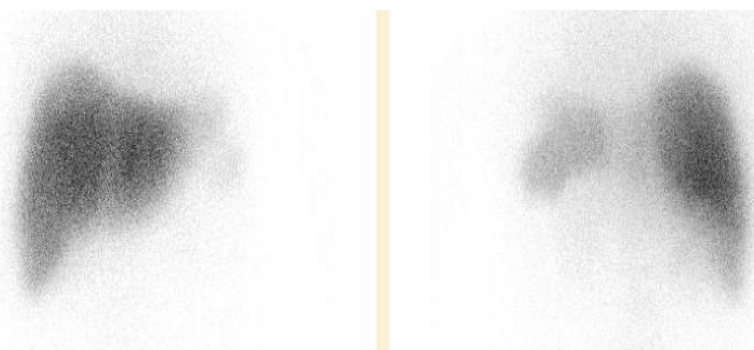


Рис. 4 Статические сцинтиграммы печени

При исследовании печени технефитом, меченым пертехнетатом  $^{99m}\text{Tc}$ , полученным из транспортируемого и стационарного генераторов, получились одинаковые картины печени. На сцинтиграмме задней проекции визуализируется селезенка, левее и выше печени.

**III Динамическая сцинтиграфия почек**

Для проведения сцинтиграфии почек применяли радиофармацевтический препарат диагностического назначения  $^{99m}\text{Tc}$ -Пентатех, который представляет собой комплекс технеция-99м с пентацином ( $\text{CaNa}_3$ -соль диэтилтриаминпентауксусной кислоты, ДТПА). Препарат после внутривенного введения выводится из крови за счет клубочковой фильтрации. Препарат применяют для определения скорости клубочковой фильтрации в диагностике различных заболеваний почек и мочевых путей.

Основными количественными параметрами динамической сцинтиграфии почек являются время наступления максимального накопления препарата  $T_{\text{max}}$  и период полувыведения из почек  $T_{1/2}$ . По  $T_{\text{max}}$  оценивают секреторную функцию, по  $T_{1/2}$  – экскреторную функцию почек.

У человека время максимального накопления препарата в почках  $T_{\text{max}}$  колеблется от 2 до 4 минут, период полувыведения из почек  $T_{1/2}$  – от 7 до 20 минут. При этом, средние величины составляют  $T_{\text{max}}$   $2,9 \pm 0,6$  мин и  $T_{1/2}$   $12,0 \pm 2,6$  мин.

На рис. 6 приведена динамическая скintiграмма больной Б., полученная с внутривенным введением 120 МБк-0,3 мл  $^{99m}\text{Tc}$ -пентатех. Проведены качественная оценка изображения почек и количественный анализ показателей динамической скintiграфии почек.

На скintiграмме на фоне силуэта тела четко визуализируются обе почки с четкими контурами, ровными краями, равномерным распределением

Проведена динамическая скintiграфия почек у больных пентатехом, меченым  $^{99m}\text{Tc}$  от переносного и стационарного генераторов. Всего обследованы 10 больных. Между испытуемым и референтным препаратами  $^{99m}\text{Tc}$ -пентатех, различий не выявлено. За все время нахождения в лаборатории до завершения работы в поведении пациентов изменений не наблюдалось.

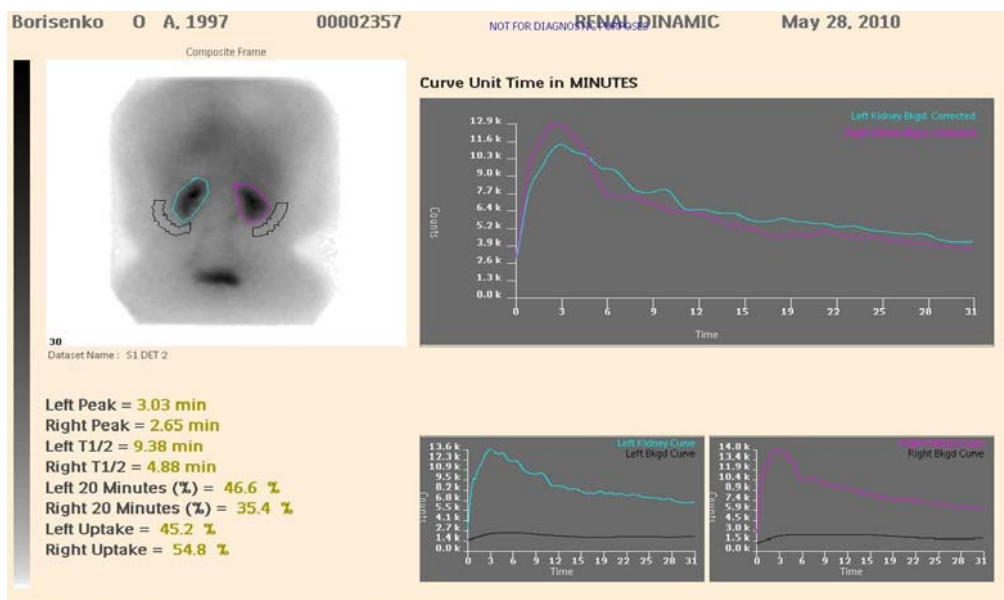


Рисунок 5 . Динамическая скintiграмма почек

#### IV Скintiграфия скелета

Для выявления метастатических очагов в костях 10 больным проведена скintiграфия скелета с технефором, меченым  $^{99m}\text{Tc}$  из транспортируемого и стационарного гель-генераторов. У всех пациентом получены качественные изображения скелета. Между испытуемым и референтным препаратами  $^{99m}\text{Tc}$ -технефор, мечеными  $^{99m}\text{Tc}$  из переносного и стационарного гель генераторов качественных различий не выявлено.

Скintiграфия скелета проводилась через 3 часа после внутривенного введения пациентам 300-500 МБк (5 МБк/кг)  $^{99m}\text{Tc}$ -технефора в объеме 0,5-1,0 мл. На рис. 6 приведены скintiграммы скелета с передней (А) и задней (Б) проекциях, Как видно, множественные очаги гиперфиксации остеотропного препарата локализовались в костях передней части скелета.

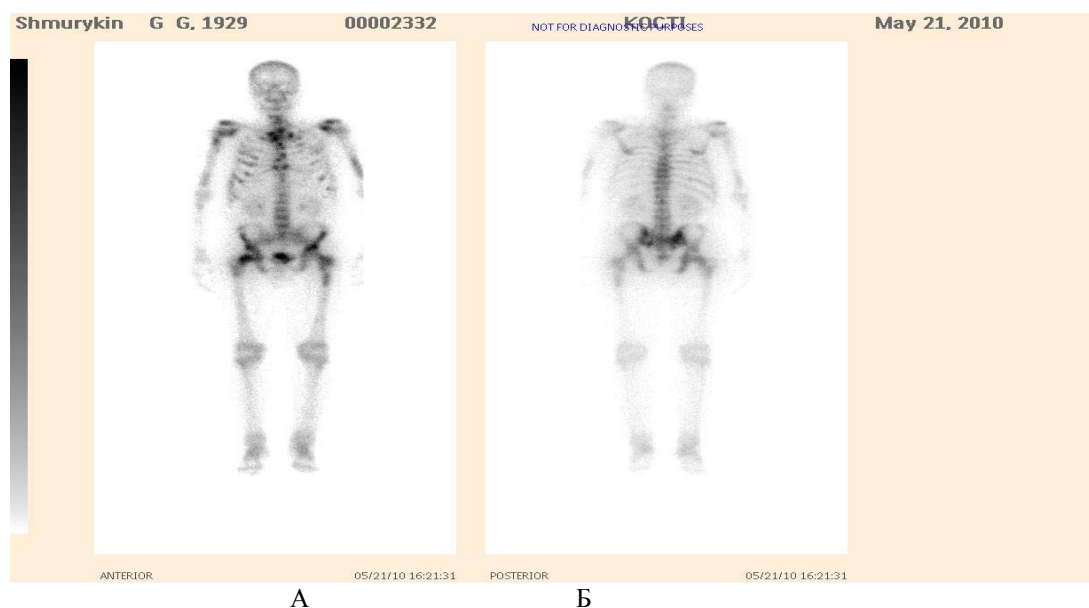


Рисунок 6 Скintiграмма скелета



**Заключение:**

«Натрия пертехнетат-<sup>99m</sup>Tc, раствор для инъекций» и меченые им радиофармпрепараты, полученные от транспортируемого гель-генератора, сохраняют свои специфические свойства, а их тропности к органам и системам позволяют получать высокоинформативные результаты.

Динамическое наблюдение во время исследования и в течение двух часов после, показало отсутствие разницы в поведении между испытуемыми и контрольными пациентами. Следовательно, «Натрия пертехнетат-<sup>99m</sup>Tc, раствор для инъекций» из переносного гель-генератора <sup>99m</sup>Tc не обладает свойствами химотоксичности и радиотоксичности.

Результаты клинических испытаний показали, что «Натрия пертехнетат-<sup>99m</sup>Tc, раствор для инъекций» из переносного гель-генератора <sup>99m</sup>Tc, производства ИЯФ НЯЦ РК, можно рекомендовать к серийному выпуску для широкого применения в клинической радионуклидной диагностике. Выпуск отечественного «Натрия пертехнетат-<sup>99m</sup>Tc, раствор для инъекций» из транспортируемого гель-генератора <sup>99m</sup>Tc будет новым шагом в развитии ядерной медицины Республики и будет способствовать расширению применения в клинической медицине столь необходимого метода, как радионуклидная диагностика.

**Использованная литература.**

1. Каратаев К.М., Джалмукашев У.К., Тажединов И.Т. Сканирование печени коллоидным раствором <sup>113m</sup>In-индия у онкологических больных. Мед. радиология, 1979. Т.24, №7. С.32-37.
2. Джалмукашев У.К., Каратаев К.М., Тажединов И.Т. Визуализация селезенки с помощью коллоидного <sup>113m</sup>In. Мед радиология, 1981. Т.26, №1. С.37-40.
3. Тажединов И.Т. Цитрат и пирофосфат меченые <sup>99m</sup>Tc в диагностике и оценке эффективности лечения первичных опухолей костей. Тезисы Всесоюзного симпозиума. Радионуклидная диагностика опухолей (25-26 ноября 1982 г.). г. Ленинград, 1982. С.75-77.
4. Джалмукашев У.К., Каратаев К.М., Тажединов И.Т. Сканирование печени коллоидным раствором <sup>113m</sup>In-индия у онкологических больных. В кн.: Советская онкология, Москва, Медицина, 1981. С.32-34.
5. Тажединов И.Т., Джалмукашев У.К. Клиническое применение генераторов короткоживущего изотопа <sup>99m</sup>Tc с высокой активностью. В кн.: Вопросы онкологии и радиологии. Выпуск V, Алма-Ата, 1983. С. 173-177.

**КЛИНИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИОФАРМАЦЕВТИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, РЕАГЕНТ» И «НАТРИЯ -О-ЙОДГИППУРАТ, <sup>131</sup>I РАСТВОР ДЛЯ ИНЪЕКЦИЙ» ПРОИЗВОДСТВА ИЯФ НЯЦ РК ДЛЯ ДИНАМИЧЕСКОЙ СЦИНТИГРАФИИ ПОЧЕК**

<sup>1</sup>И.Т. Тажединов, <sup>1</sup>Н.С. Нурғалиев, <sup>1</sup>М.С. Косанов, <sup>1</sup>Б.Ж. Кенжебаев, <sup>1</sup>Б.Т. Онгарбаев, <sup>2</sup>Е.Т. Чакрова, <sup>2</sup>В.И. Банных, <sup>2</sup>А.В. Мясищев, <sup>2</sup>С.У. Даулбаев, <sup>2</sup>В.М. Чумикова.

<sup>1</sup>Казахский НИИ онкологии и радиологии, <sup>2</sup>Институт ядерной физики НЯЦ, РК, Алматы, Казахстан

В Институте ядерной физики НЯЦ РК продолжают работы по разработке радиофармпрепаратов, предназначенных для диагностических целей.

Радионуклидные методы диагностики широко используются в различных областях научной и практической медицины: в кардиологии, онкологии, гепатологии, уронефрологии, эндокринологии, неврологии и нейрохирургии, педиатрии, гематологии, хирургии, пульмонологии, аллергологии, иммунологии. Например, в онкологии именно использование радионуклидных исследований позволяет определить первоначальную локализацию рака, провести дифференцирование между доброкачественным и злокачественным новообразованиями, установить стадию заболевания (местное, наросты, метастазы), оценить эффективность лечения или обнаружить рецидив.

«ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций», произведенные в ИЯФ НЯЦ РК, применяются для диагностики почек и мочевыводящих путей, определения скорости клубочковой фильтрации и гаммасцинтиграфии почек, а «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» кроме вышеуказанных показаний применяется также для визуализации новообразований головного мозга и радионуклидной ангиокардиографии

«ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» - это лиофилизат белого цвета, который получается при взаимодействии кальций-тринатрия диэтилтриаминпентаацетата с хлоридом олова (II) в присутствии аскорбиновой кислоты и последующим вакуумным высушиванием путем вымораживания. Для диагностики применяется раствор лиофилизата в растворе натрия пертехнетата <sup>99m</sup>Tc, который готовится в лечебном учреждении.

Препарат «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» готовится путем синтеза натрия о-йодгиппурата и раствора <sup>131</sup>I при автоклавировании при температуре 120° С и давлении 1,1-

Так как эти диагностические радиофармпрепараты применяются для одного вида исследования – почек, в качестве референтного препарата использовали «Пентатех, <sup>99m</sup>Tc, реагент для получения» производства «Радиофармпрепарат» (Ташкент, Узбекистан).

Целью настоящего исследования является клинические испытания «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций», разработанные в ИЯФ НЯЦ РК.

Задачи исследования:

- провести динамическую сцинтиграфию почек у пациентов с внутривенным введением «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» производства ИЯФ НЯЦ РК, растворенного в 5 мл <sup>99m</sup>Tc-пертехнетата;

- провести динамическую сцинтиграфию почек пациентам с внутривенным введением «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» производства ИЯФ НЯЦ РК;
- провести динамическую сцинтиграфию почек у пациентов с внутривенным введением референтного вещества «Пентатех», производства «Радиопрепарат» (Узбекистан, Ташкент), разбавленного в 5 мл <sup>99m</sup>Tc-пертехнетате;
- следить за состоянием пациентов во время введения препарата и динамической сцинтиграфии, а также по завершению исследования до конца рабочего дня;

**Аппаратура** С помощью дозкалибратора измерялась активность изотопов и рассчитывался объем раствора изотопа, необходимый для исследования в зависимости от веса пациента. При сцинтиграфии «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» вводится внутривенно 110-370 МБк <sup>99m</sup>Tc /70 кг веса, с помощью «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» -7,2-16 МБк <sup>131</sup>I. Для регистрации распределения изотопов при диагностике почек и мочевыводящих путей применялась гамма-камера PHILIPS FORTE.

После внутривенного введения «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» препарат выводится в неизменном виде канальцевой секрецией, точнее проксимальными канальцами почек. При введении 180-240 МБк препарата лучевая нагрузка пациента на почки составляет 4,8 мЗв, на все тело – 0,32 мЗв. Биологический период полувыведения составляет около 20 минут.

Испытуемый препарат «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» вводится внутривенно в объеме 0,5-1,5 мл из расчета 0,12-0,2 МБк на кг веса пациента. 12 МБк препарата лучевую нагрузку составляет на почки 0,9 мЗв, на все тело – 0,06 мЗв.

В первую фазу клинического испытания «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» включаются практически здоровые лица на добровольной основе при наличии письменного подтвержденного согласия в листе «Согласия пациента» с целью оценки структурных и функциональных состояний почек и мочевых путей. Второй фазе клинического испытания подвергаются пациенты с подозрениями или уже выявленными патологическими изменениями структурных и функциональных состояний почек, также при наличии письменного подтвержденного согласия пациента.

На испытание каждого препарата набиралось 2 группы по 7-8 человек, первая группа со здоровыми почками, вторая с нарушениями секреторной деятельности почек. Всего было исследовано 40 пациентов.

Количественными параметрами динамической сцинтиграфии почек являются время наступления максимального накопления препарата  $T_{max}$  и период полувыведения его из почек  $T_{1/2}$ . По  $T_{max}$  оценивают секреторную, по  $T_{1/2}$  – экскреторную функции почек. На таблице приведены средние величины основных параметров секреторно-экскреторной функции почек, обследованных пациентов, с испытуемыми и референтным РФП.

Таблица – Количественные параметры динамической сцинтиграфии почек с «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» , «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» и референтным «Пентатех, <sup>99m</sup>Tc, реагент для получения»

№№ групп	Наименование радиофарм-препарата	Кол –во пациент.	$T_{max}$		$T_{1/2}$	
			от и до	$M \pm m$	от и до	$M \pm m$
1	«ДТПА, <sup>99m</sup> Tc, реагент»	8	2,2-5,9	3,8±0,3	6,1-9,0	7,9±0,5
2	«ДТПА, <sup>99m</sup> Tc, реагент»	7	6,3-22,7	13,2±1,9	19,7-28,2	24,6±2,2
3	Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup> I раствор для инъекций»	8	3,1-5,9	4,7±0,4	6,0-9,0	7,5±0,7
4	Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup> I раствор для инъекций»	7	6,3-21,3	11,1±2,8	19,7-28,2	22,1±1,5
5	«Пентатех, <sup>99m</sup> Tc, реагент для получения»	5	2,1-5,9	3,9±0,4	6,2-9,0	8,3±0,6
6	«Пентатех, <sup>99m</sup> Tc, реагент для получения»	5	6,2-19,9	12,8±2,0	19,6-26,3	23,9±2,4

Примечания – 1,3,5 группы- пациенты с нормальными показателями функции почек и 2,4,6 –группы- пациенты с изменениями секреторно-экскреторной функции почек с испытуемыми РФП «ДТПА, <sup>99m</sup>Tc, реагент»; «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» и референтным «Пентатех, <sup>99m</sup>Tc, реагент для получения»



Проводилась также качественная оценка кривых динамической сцинтиграфии почек. В кривых динамической сцинтиграфии с испытуемым «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент», «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» и референтным <sup>99m</sup>Tc, реагент для получения» четко выделяются секреторная и экскреторная фазы. На рис. 1,2,3 представлены сцинтиграммы почек с нормальными секреторными функциями, проведенными с исследуемыми РФП и референтным препаратом.

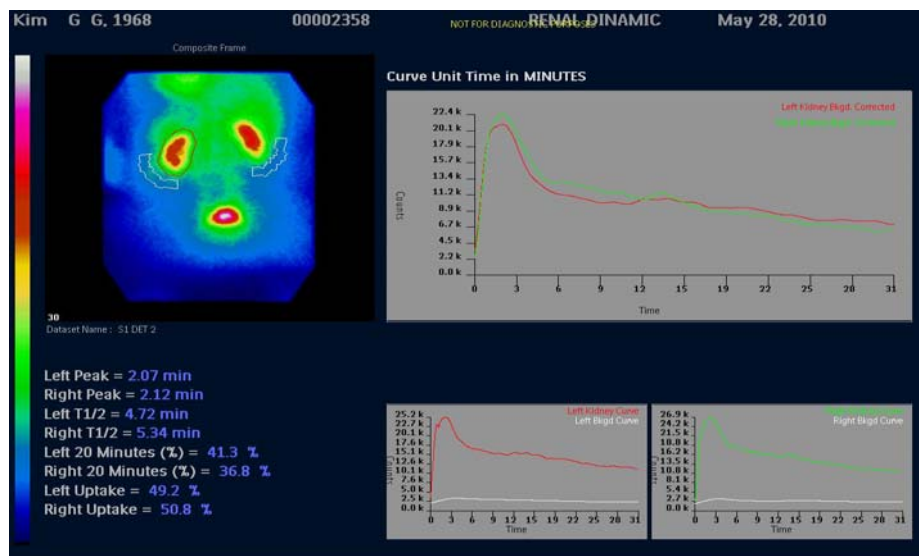


Рисунок 1. Динамическая сцинтиграмма почек с «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» у пациента с нормальными секреторно-экскреторными функциями почек.

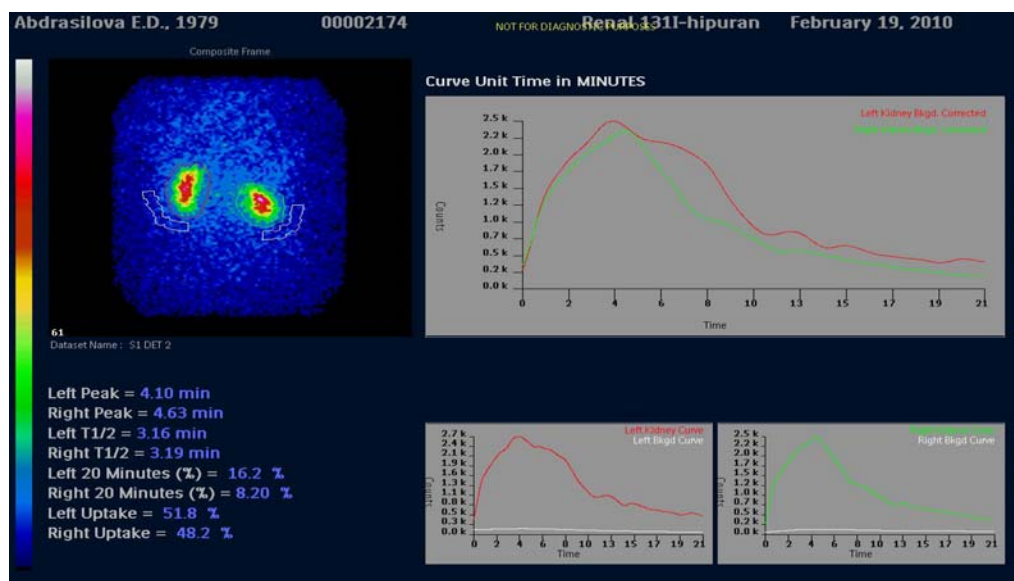


Рисунок 2. Динамическая сцинтиграмма почек с «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» у пациента с нормальными секреторно-экскреторными функциями почек.

Из этих рис.1-3 видно, на всех сцинтиграммах четко визуализируются обе почки обычного расположения, с четкими контурами, ровными краями и равномерным распределением РФП, т. е. почки без структурных изменений. В нижней части тела контурируется мочевого пузырь. Здесь же, справа от сцинтиграфического изображения почек, приведены кривые накопления и выведения препарата с параметрами времени  $T_{max}$  и  $T_{1/2}$ .

На сцинтиграммах почек с нарушением секреторных функций наблюдается другие картины в зависимости от заболевания, например на рис.4 представлена динамическая сцинтиграмма почек, исследованная с «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент», у пациента с диффузно измененной с нарушениями секреторно-экскреторными функцией правой почки и «Немой почкой» слева.

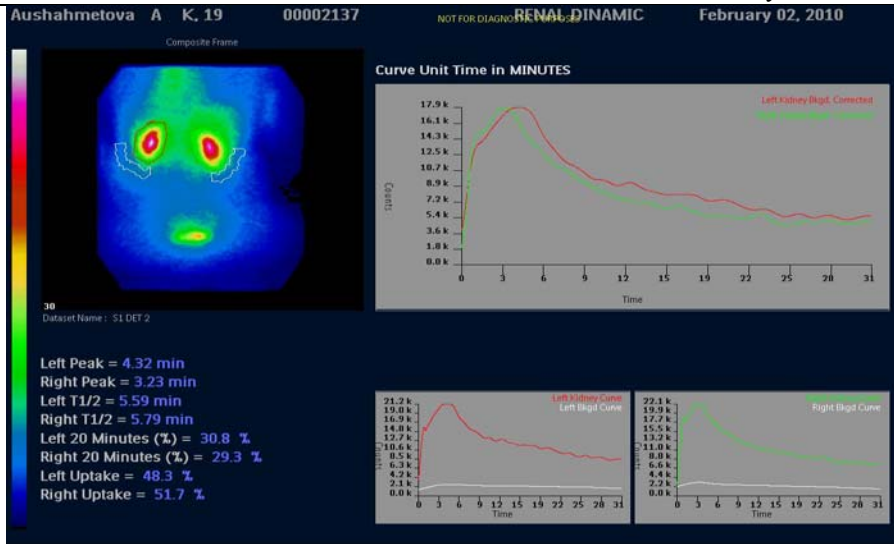


Рисунок 3. Динамическая сцинтиграмма почек с «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» у пациента с нормальными секреторно-эксcretорными функциями почек.

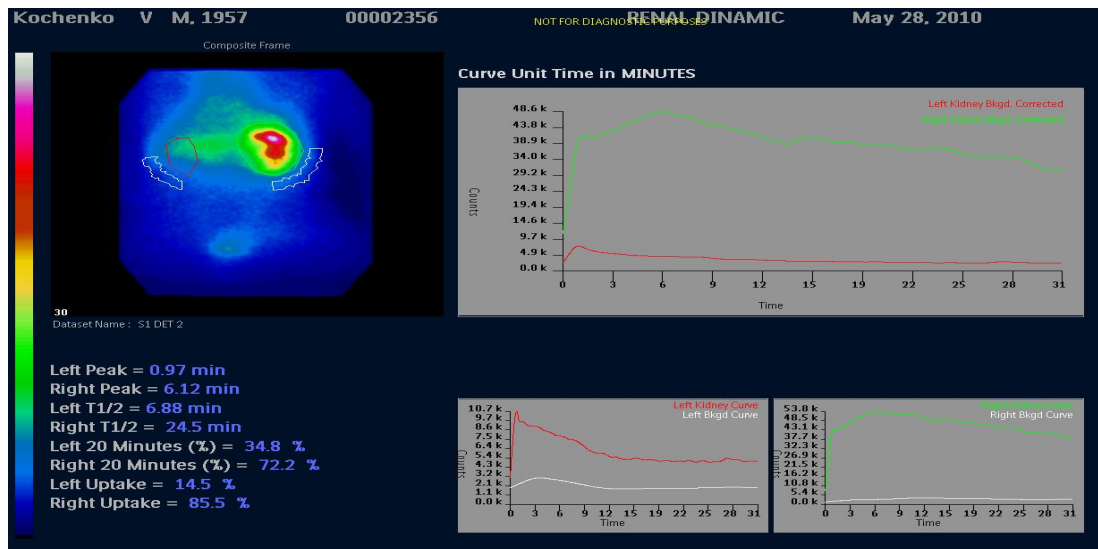


Рисунок 3. Динамическая сцинтиграмма почек «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» у пациента диффузно измененной, нарушениями секреторно-эксcretорными функциями правой почки и «Немой почкой» слева.

На рис.4 представлена динамическая сцинтиграмма почек с «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» у пациента с нарушениями секреторно-эксcretорными функциями почек.

У всех пациентов непосредственно во время введения РФП и на протяжении исследования, а также в ближайших 2 часов наблюдения никаких изменений в состоянии и внешних проявлений болезни не наблюдались.

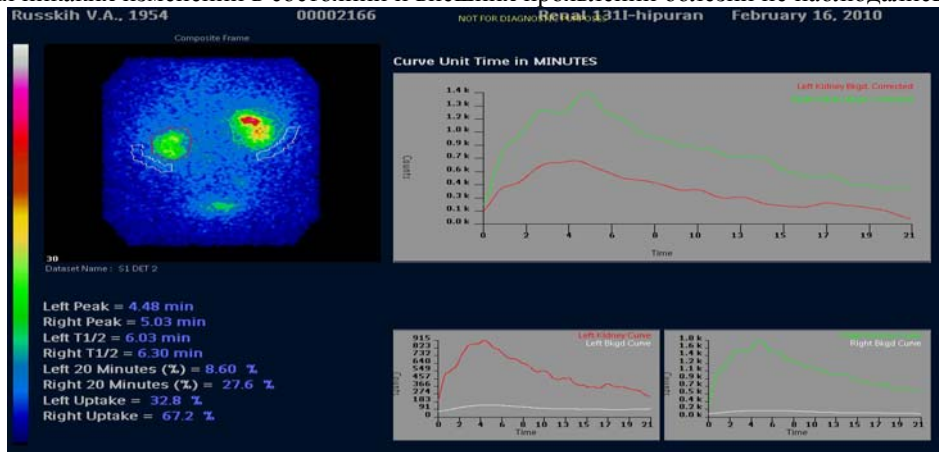


Рисунок 4. Динамическая сцинтиграмма почек с «Натрия о-йодгиппурат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» у пациента с нарушениями секреторно-эксcretорными функциями почек.

Анализ количественных и качественных параметров результатов динамической сцинтиграфии показал, что «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппулат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций», разработанные в ИЯФ НЯЦ РК, секретируются почками и выводятся из почек (экскретируется) в мочевой пузырь с мочой. Тем самым, данные препараты позволили по кривой динамической сцинтиграфии оценить секреторно-экскреторную функцию почек у пациентов, визуализировать почки и мочевой пузырь. Как видно, механизм включения и выведения, фармакодинамика испытуемых и референтного веществ в теоретическом и практическом плане идентичны. Следовательно, «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппулат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» успешно прошли клинические испытания.

Результаты клинических испытаний показали, что «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, реагент» и «Натрия о-йодгиппулат, <sup>131</sup>I раствор для инъекций» производства ИЯФ НЯЦ РК можно рекомендовать к серийному выпуску.

#### **Использованная литература**

1. А. Зубовский, Р. И. Габуния. Радионуклидная диагностика заболеваний почек. Клиническая рентгенодиагностика. Т. 3. Радионуклидная диагностика. Компьютерная томография. Москва. Медицина. 1985, С.137-163.
2. О.Н. Ефимов, Е.Г. Матвеев, Г.А. Давыдов, В.Ф. Смирнов. Динамическая сцинтиграфия почек. // В кн.: Стандартизированные методики радиоизотопной диагностики (Методические рекомендации). Обнинск, 1987. С. 232-236.
3. K.E. Britton, N.J.G. Brown. The value in obstructive nephropathy of the Hippuran output curve derived by computer analysis of the renogram. //Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine. Proceedings of a Symposium, Rotterdam, 31 august - 14 September 1970. Vol. I International Atomic energy agency. – Vienna. – 1971. - P. 263-275.
4. D.G. Pavel, B.D. Kahan, Quinn III, J.J. Bergan, B.R. Westerman. Multilateral evaluation of renal transplants with radionuclides. //Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine 1974. Proceedings of a Symposium, Knoxville, 15-19 July 1974. Vol. I. International Atomic energy agency. – Vienna. – 1975. - P. 307-327.
5. В.П. Ищенко. Радиоизотопное исследование функционального состояния почек с помощью гипурана, меченого <sup>131</sup>I. В кн.: Радиоизотопная диагностика. Под редакцией проф. Т. П. Сиваченко и А. Ю. Ратманского. Издательство „Здоров’я“ Киев 1969, С. 138-154.
6. И. М. Эпштейн, В. Г. Спесивцева, И. И. Золотарев, Ю. Я. Глейзер. Радиоизотопная диагностика заболеваний мочевой системы. Издательство «Медицина». Москва, 1969.
7. Властимил Вишек. Изотопная ренография в клинической практике. «Авиценум» Издательство Медицинской литературы. Прага, 1971. 216 с.
8. В. П. Ищенко. Радиоизотопные исследования почек и мочевых путей. В кн.: Диагностическое и лечебное применение радиоактивных изотопов. Под редакцией проф. Т. П. Сиваченко. „Здоров’я“ Киев 1976, С. 183-213.
9. K. zum Winkel, H. Jost, F. Motzkus, G. Golde. Renal function studies with radioisotopes. //Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine. Proceedings of a Symposium, Rotterdam, 31 august - 14 September 1970. Vol. I International Atomic energy agency. – Vienna. – 1971. - P. 229-251.
10. U. Meldolesi, L. Mombelli, G. Roncari. Problemes relatifs a la determination de la radioactivite eliminee dans les urines au cours du nephrogramme. //Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine. Proceedings of a Symposium, Rotterdam, 31 august - 14 September 1970. Vol. I International Atomic energy agency. – Vienna. – 1971. - P. 279-287.
11. J.L. Morcellet, A. Baret. Nephrogramme a l' Hippuran. Expression des resultants en debits et en temps de sejour renaux apres analyse des donnees recueillies par une camera travaillant avec deux isotope. //Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine. Proceedings of a Symposium, Knoxville, 15-19 July 1974. Vol. I. International Atomic energy agency. – Vienna. – 1975. - P. 277-293.
12. Eva V. Dubovsky, J.R. Logic, W.N. Taux, A.G. Diethelm, W.N. Sterling. Dynamic renal studies in the early post-transplant period. // Dynamic Studies with Radioisotopes in Medicine 1974. Proceedings of a Symposium, Knoxville, 15-19 July 1974. Vol. I International Atomic energy agency. – Vienna. – 1975. - P. 329-340.

## **НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ БОЛЬШИХ ОБРАЗЦОВ НЕФТИ**

В.Г.Зиновьев, П.А.Сушков, Г.И.Шуляк, Т.М.Тюкавина

*Отделение нейтронных исследований петербургского института ядерной физики. Гатчина, Россия.*

*Приведены результаты нейтронно-активационный анализ (ИНАА) образцов нефти. Рассчитаны поправка  $\alpha = 0,023$  на отклонение потока эпитепловых нейтронов от закона  $1/E$  и коэффициенты экранирования  $\xi$  нейтронного потока материалом образца разной массы.*

#### **Введение.**

ИНАА был использован как аналитический метод для определения примесей в образцах сырой нефти из месторождений восточной Сибири. Обычно в ИНАА используются образцы точечной геометрии (малый объем, малая масса) для уменьшения эффекта самоэкранирования нейтронного потока внутри образца. Однако интенсивность гамма линий аналитических нуклидов в спектре образца, а значит, и чувствительность их определения может быть

увеличена за счет увеличения его массы. Это и было использовано в нашей работе для улучшения пределов обнаружения (ПО) и увеличения числа определяемых элементов. В качестве дополнения нужно отметить, что мы считаем образец большим если необходимо учитывать эффект самоэкранирования.

#### Эксперимент.

Анализ образцов нефти был проведен с образцами двух типов. Первый тип - образцы, вес которых не превышал 100мг и второго типа – «большие образцы» весом от 30 до 100г. Предполагается что все образцы, в которых надо учитывать экранировку нейтронного потока материалом образца можно считать большими. Обычные образцы запаивались в кварцевые ампулы из высокочистого кварцевого стекла (HSQ 910, Heraeus Quarzglas, Ø5мм, h=6см, толщина стенки 1,5мм) и облучались в экспериментальном канале (ЭК) реактора ВВР-М. Большие образцы упаковывались в кварцевые контейнеры (h=100мм, Ø31мм). В процессе запайки большого образца шейка ампулы оттягивалась на капилляр, который использовался для уменьшения давления внутри ампулы в процессе облучения за счет радиолиза.

Облучение образцов проводили на реакторе ВВР-М работающем на мощности 16 МВт. Плотность потока тепловых  $f_{th}$  и эпитепловых  $f_{epi}$  нейтронов при облучении образцов первого типа составила  $8 \cdot 10^{13}$  и  $1.5 \cdot 10^{12}$   $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  соответственно. Облучение проводили в мокром экспериментальном канале (ЭК) ВЗ. Изменение плотности потока в пределах пространства облучения образцов было не более 5%. Облучение «больших» образцов проводили в сухом ЭК В14. Плотности потоков тепловых и эпитепловых нейтронов составляли  $n \cdot 10^{12}$  и  $n \cdot 10^{11}$   $\text{см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  соответственно. Распределение плотности потоков тепловых и эпитепловых нейтронов было определено методом двух мониторов [1] по Au (Au – 0,1%, Al – 99,99%) и Co (Co – 1%, W-2%, Al – 97%). Для расчета распределения плотности потока тепловых и эпитепловых нейтронов мониторы равномерно располагали по высоте и периметру большого образца. Для обоих типов образцов время облучения составило 1 часа.

После облучения образцы переносили в чистые стеклянные боксы и передавали на гамма-спектрометр для регистрации гамма-спектра. Регистрация спектров проводилась через 1, 7 и 15 дней после облучения. Жесткая часть гамма излучения ( $E_\gamma > 300$  кэВ) анализируемых образцов регистрировалась коаксиальным HPGe детектором (эффективность регистрации 15%, ПШПВ 2,8 кэВ по гамма линии 1332,5кэВ  $^{60}\text{Co}$ ), а мягкая часть тонким планарным HPGe детектором DSGmbH PSP 1000-13 (ПШПВ 0,9 кэВ по  $E_\gamma = 121,7817$  кэВ  $^{152}\text{Eu}$ ).

Для определения элементного состава образцов нефти были использованы два метода: относительный и абсолютный. Относительный метод был применен для анализа образцов весом до 100 мг, а абсолютный для анализа «больших» образцов.

#### Обсуждения.

Для расчета распределения нейтронного потока по поверхности образца полагали, что он представляет собой цилиндр (рис. 1) ось которого совпадает с осью Z декартовой системы координат. Любой элемент поверхности определяется двумя координатами: высота  $h$  и углом  $\varphi$  между осью OX и проекцией радиус вектора  $r$ , проведенного из начала координат к элементу поверхности, на плоскость XOY. Функцию, описывающую распределение потока нейтронов по высоте образца при заданном угле  $\varphi$  определяли, используя метод наименьших квадратов, аппроксимируя степенными полиномами, экспериментальные значения потоков определенных по мониторам расположенным на его поверхности (Рис. 1).

Активность  $A$  аналитического нуклида в образце, представили как сумму  $A = \sum_i A_i$ , где  $A_i$  его активность внутри  $i$ -той элементарной объемной ячейки на которые был разбит весь образец. Поток внутри  $i$ -ой элементарной объемной ячейке рассчитывался как сумма  $f_i = \sum_{j=1}^n \Phi_j$ , где  $\Phi_j$  – плотность потока нейтронов от  $j$ -ого элемента поверхности.

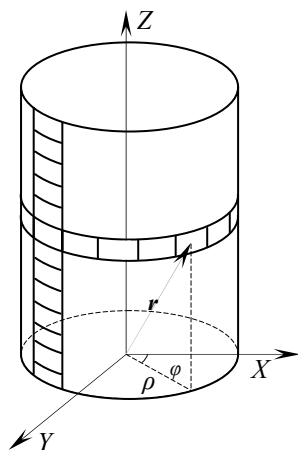


Рис. 1. Модель большого образца.

Плотность потока в  $i$ -той элементарной объемной ячейке  $f_i$ , а соответственно и распределение плотности потока внутри образца проводили с помощью разработанной программы. Программа рассчитывает поток в  $i$ -ой

элементарной объемной ячейке от  $j$ -ого элемента поверхности по уравнению, которое является решением уравнения диффузии нейтронов

$$\Phi_{thij}(r) = \frac{Q}{4\pi D} \frac{e^{-r/L}}{r} \quad (1)$$

где  $L$  – длина диффузии  $L = \sqrt{D/\Sigma_a}$ ,  $D$  – коэффициент диффузии  $D = \frac{1}{3(\Sigma_{tr} + \Sigma_a)}$ ,  $\Sigma_{tr}$  – транспортное сечение,  $\Sigma_a$

и  $\Sigma_s$  – макроскопические сечения поглощения и рассеяния соответственно,  $r$  – расстояние от объемной ячейки в образце до элемента поверхности,  $Q$  – мощность источника нейтронов (отношение плотности потока в элементе поверхности к площади данного элемента поверхности). В расчетах предполагалось, что рассеянные нейтроны остаются внутри «большого» образца. Это предположение не учитывает обратно рассеянные нейтроны, выбывающие из процесса активации образца, что в свою очередь приводит к увеличению ошибки результата.

Для проверки эффективности работы программы аликвоты стандартного образца нефти МДКЦ-1 (0.07 % Zn) были запаяны в маленькие ампулы (внутренний Ø1,5мм, h=15мм) и вместе с мониторами потока размещены в большом образце нефти (Ø28мм, h=100мм) вдоль его диаметра на высоте 30 мм от нижней поверхности образца. Рис. 2 показывает, что экспериментальные и расчетные данные согласуются в пределах 10%.

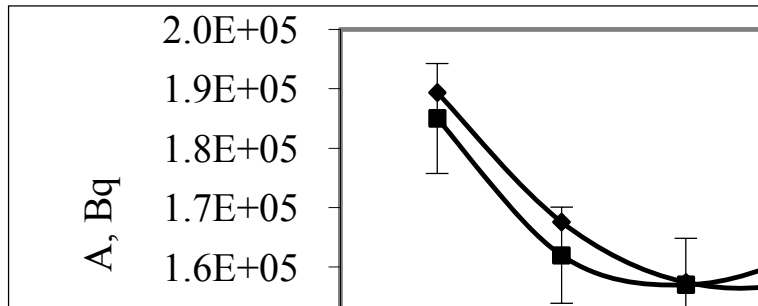


Рис 2. Распределение экспериментальной и рассчитанной удельной активности  $^{65}\text{Zn}$  ( $E_\gamma=1115,52$  кэВ) в стандартах внутри большого образца нефти.

Коэффициент самоэкранирования рассчитывался по методике изложенной в [2] по формуле

$$f_{cyl} = f_{slab} + (8\xi^{1.4} e^{-3.72\xi} + 0.4e^{8\xi}) (f_{sphere} - f_{slab}) \quad (2)$$

в которой

$$\xi = \frac{Rh}{R+h} \sum_{i=1}^n N_i \frac{(\sigma_{abs,i} + \sigma_{sc,i}) + \frac{\Phi_{epi}}{\Phi_{th}} I_{abs,i}}{1 + \frac{\Phi_{epi}}{\Phi_{th}}}, \quad f_{slab} = \frac{1}{2\xi} \left( 1 - e^{-\xi} + \xi e^{-\xi} + \xi^2 \left( C + \ln \xi + \sum_{k=1}^p \frac{(-\xi)^k}{k k!} \right) \right)$$

при условии что если  $\xi < 0.1$  то  $p=5$ , если  $0.1 < \xi < 1$  то  $p=10$ , и если  $\xi > 1$  то  $p = \text{int}(5\xi) + 5$ .

Величина  $f_{sphere}$  при условии  $\xi \leq 0.003$  определяется выражением  $f_{sphere} = 1 - \frac{9}{8}\xi$ , а при  $\xi > 0.003$  формулой

$$f_{sphere} = \frac{2}{9\xi^3} \left( \frac{9}{4}\xi^2 - \frac{1}{2} + \left( \frac{1}{2} + \frac{3\xi}{2} \right) \exp(-3\xi) \right). N_i - \text{число атомов } i\text{-го элемента в } 1\text{см}^3, C=0.577215 - \text{константа}$$

Эйлера,  $\sigma_{abs,i}$  и  $\sigma_{sc,i}$ ,  $I_{abs,i}$  – сечение поглощения и рассеяния на тепловых нейтронах, а также резонансный интеграл поглощения для  $i$ -го элемента,  $\Phi_{epi}$  и  $\Phi_{th}$  – эпитепловая и тепловая составляющие нейтронного потока,  $R$  и  $h$  – радиус и высота образца соответственно. Результаты расчета  $\xi$  для образцов нефти среднего класса плотности ( $\rho=0,85\text{г/см}^3$ ) и массовым процентным содержанием основных элементов: С – 85%, Н – 12%, S – 3% даны в таблице 1.

Таб.1. Коэффициент  $\xi$  для нефтяных образцов разного радиуса  $r$ , высотой 10см.

	$r, \text{ см}$					
	0,2	0,5	1	2	4	5
$\xi$	0,98	0,96	0,92	0,88	0,80	0,77

Коэффициент  $\alpha$  был рассчитан по табличным значениям резонансного интеграла  $I_0$  из условия равенства 0 функции следующего вида  $F(\alpha) = A_{theory} - A_{exp}$ , где  $A_{exp}$  – экспериментально определенное значение активности монитора потока,  $A_{theory}$  рассчитывали по формуле

$$A_{theory} = (\sigma_{th}f_{th} + I(\alpha)f_r) \frac{mpN_a}{M} D \quad (3)$$

где  $m$ - масса монитора. Резонансный интеграл рассчитывали по формуле [2]:

$$I(\alpha) = \frac{I_0 - 0.429\sigma_{th}}{\bar{E}_r^2} + \frac{0.429\sigma_{th}}{(2\alpha + 1)0.55^\alpha}, \quad (4)$$

$\sigma_{th}$  и  $I_0$  – сечение активации на тепловых нейтронах и резонансный интеграл соответственно,  $\bar{E}_r$  - эффективная резонансная энергия,  $p$  – распространенность аналитического изотопа. Ядерно-физические данные были взяты из работ [2,3].

Для использования абсолютной методики анализа больших образцов необходимо знать зависимость эффективности регистрации детектора от энергии гамма квантов аналитических нуклидов. Для этой цели стандартные источники активности такой же геометрии что и большие образцы готовились из соли ацетата европия взятой в количестве 10-15мг. Навеску ацетата европия облучали в канале реактора при потоке нейтронов  $8 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2} \text{ с}^{-1}$  в течение 0,5 часа. Через месяц после облучения регистрировался гамма спектр и рассчитывалась активность изотопа  $^{152}\text{Eu}$  в точечной геометрии по стандартным источникам гамма излучения ОСГИ 3. После этого навеска облученного ацетата европия растворяли в растворе бутанола и уксусной кислоты, взятых в соотношении 95:5. Доводили раствором до объема (с учетом формы) большого образца и регистрировали гамма спектр для расчета эффективности детектора.

Массовую долю (%) определяемого элемента в «большом» образце рассчитывали по формуле

$$C = \frac{AM100}{N_a p \sum_{i=1}^n (m_{ci} (\sigma_{th} f_{thi} + I(\alpha) f_{epi})) D} \quad (5)$$

Где  $A$  – активность аналитического нуклида определяемого элемента в образце,  $f_{thi}, f_{epi}$  и  $m_{ci}$  – тепловой и эпитепловой поток, а так же масса в  $i$ -той элементарной объемной ячейке,  $n$  – количество элементарных ячеек в большом образце,  $p$  – распространенность аналитического изотопа определяемого элемента,  $M$  – атомный вес определяемого элемента.

$D = (1 - \exp(-\lambda t_{ir})) \exp(-\lambda t_d)$  - поправка на время облучения  $t_{ir}$  и распада  $t_d$  образца,  $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ ,  $T_{1/2}$  период полураспада.  $\sigma_{th}$  и  $I(\alpha)$  – сечение активации на тепловых нейтронах и резонансный интеграл соответственно.

Для контроля точности методики был проведен анализ стандартных образцов нефти МДКЦ1, МДКЦ2, МДКЦ3. Результаты верификации приведены в таблице 2.

**Таб.2.** Результаты НАА стандартных образцов нефти проанализированных относительно (образцы весом до 100мг) и абсолютным методами (образцы весом до 100г).

Стандарт	Сертифицированное значение, %	Относительная методика		Абсолютная методика	
		Содержание Zn, %	Стандартное отклонение	Содержание Zn, %	Стандартное отклонение
МКДЦ-1	0,14(1)%	0.1395	0.0046	0.147	0,0051
МКДЦ-2	0,07(1)%	0.0762	0.0049	0,079	0,0050
МКДЦ-3	0,10(1)%	0.1001	0.0044	0.112	0,0052

Сравнение результатов анализа нефти, полученные абсолютным и относительным методами, даны в таблице 3. В таблице 4 приведены данные, полученные методом рентгенофлуоресцентного анализа (РФА) нефти на содержание V и S для нескольких месторождений Сибири.

**Таб. 3.** Содержание примесей и их пределы обнаружения (ПО) для абсолютной и относительной методик нейтронно-активационного анализа нефти. Среднебутоубинское месторождение, глубина бурения 1886-1891.

Элемент	ПО, ppm		ПО <sub>Б</sub> /ПО <sub>Р</sub>	Элемент	ПО, ppm		ПО <sub>Б</sub> /ПО <sub>Р</sub>
	РНААА	ИНААБО			РНААА	ИНААБО	
Na	5,0E-01	1,0E+00	2,0E+00	Cs	3,0E-03	2,0E-05	6,7E-03
K	1,0E+00	2,0E+00	2,0E+00	Ba	1,0E-01	2,0E-02	2,0E-01
Ca	5,0E+01	1,0E+01	2,0E-01	La	6,0E-04	2,0E-04	3,3E-01
Sc	3,0E-04	1,0E-04	3,3E-01	Ce	2,0E-02	4,0E-04	2,0E-02
Cr	8,0E-02	6,0E-03	7,5E-02	Nd	8,0E-03	2,0E-03	2,5E-01
Fe	3,0E+00	6,0E-01	2,0E-01	Sm	6,0E-05	2,0E-05	3,3E-01
Co	4,0E-03	5,0E-04	1,3E-01	Eu	3,0E-04	6,0E-05	2,0E-01
Cu	1,0E+00	2,0E-01	2,0E-01	Gd	1,0E-02	2,0E-03	2,0E-01
Zn	3,0E-01	2,0E-01	6,7E-01	Tb	7,0E-04	2,0E-04	2,9E-01
Ga	3,0E-03	3,0E-04	1,0E-01	Dy	2,0E-02	4,0E-03	2,0E-01
Ge	1,0E+00	2,0E-01	2,0E-01	Ho	1,0E-03	7,0E-04	7,0E-01
As	2,0E-04	1,0E-04	5,0E-01	Tm	6,0E-04	2,0E-04	3,3E-01

Se	1,0E-02	3,0E-03	3,0E-01	Yb	1,0E-03	1,0E-04	1,0E-01
Br	5,0E-04	3,0E-04	6,0E-01	Lu	1,0E-04	3,0E-05	3,0E-01
Rb	6,0E-02	1,0E-02	1,7E-01	Hf	6,0E-03	5,0E-04	8,3E-02
Sr	4,0E-01	1,0E-01	2,5E-01	Ta	6,0E-04	2,0E-05	3,3E-02
Zr	2,0E-01	2,0E-02	1,0E-01	W	1,0E-03	7,0E-05	7,0E-02
Mo	2,0E-03	3,0E-04	1,5E-01	Ir	2,0E-05	8,0E-06	4,0E-01
Ag	5,0E-03	1,0E-03	2,0E-01	Pt	2,0E-03	7,0E-04	3,5E-01
Cd	1,0E-02	1,0E-03	1,0E-01	Au	3,0E-05	7,0E-06	2,3E-02
Sn	4,0E-01	7,0E-03	1,8E-02	Hg	8,0E-04	2,0E-04	2,5E-01
Sb	7,0E-04	1,0E-04	1,4E-01	Th	7,0E-04	2,0E-04	2,9E-01
Te	3,0E-02	5,0E-04	1,7E-02	U	6,0E-04	1,0E-04	1,7E-01

В таблице 3 отношение ПО<sub>б</sub>/ПО<sub>р</sub> есть отношение ПО «большого» и обычного образцов.

**Таб.4.** Содержание V и S полученные с помощью РФА метода для ряда образцов из разных месторождений Сибири.

Месторождение	нефтяная скважина	Глубина бурения, м	V, %	S, %
Иктехская	658	1739	$3,94 \cdot 10^{-6}$	$4,43 \cdot 10^{-3}$
Мачебинская	20406	2117-121.5	$1,32 \cdot 10^{-5}$	$9,50 \cdot 10^{-3}$
Нижнедебская	187	1772-1836	$1,52 \cdot 10^{-3}$	1,54
Тас-Юрахская	14107	1972-1978	$1,55 \cdot 10^{-4}$	$1,20 \cdot 10^{-1}$
Среднебутуобинская	24	1886-1891	$2,39 \cdot 10^{-5}$	$8,76 \cdot 10^{-2}$
Среднебутуобинская	85	1931-936.5	$9,12 \cdot 10^{-4}$	1,63
Горчинская	1	2475-2484	$1,73 \cdot 10^{-3}$	$3,20 \cdot 10^{-1}$
Тевленско-Русинская	1304	2609-2628	$9,01 \cdot 10^{-5}$	$7,96 \cdot 10^{-2}$

#### Литература

1. Ho Manh Dung, Fumio Sasajima, Determination of  $\alpha$  and  $f$  for k0-NAA in irradiation sites with high thermalized neutrons, Journal of Radioanalytical and Nuclear Physics.
2. Erdtmann G. Petri H., Nuclear activation analysis: fundamentals and techniques, Treatise on analytical chemistry, vol, 14, Part 1, New York, 1986,
3. Mughabghab S.F., Atlas of neutron resonance, 2006, Resonance parameters and thermal cross sections, Z=1-100, Elsevier, Nuclear Chemistry, Vol, 257, No, 3 (2003) 509,512

УДК 539.1.074

### ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТОЛЩИН ДЕТЕКТОРОВ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СПЛОШНОГО $\beta$ -СПЕКТРА

Артемов С. В., Радюк Г. А., Караходжаев А. А., Абдуллаева Я. С., Якушев В. П.  
Институт Ядерной Физики АН РУз, Ташкент, Узбекистан

#### ВВЕДЕНИЕ

В ядерно-физических экспериментах на ускорителях для идентификации и спектрометрии заряженных частиц используются полупроводниковые кремниевые детекторы с толщинами от десятков микрометров до нескольких миллиметров. Функционально детекторы делятся на два типа: детекторы ионизационных потерь (пролетные) и детекторы полного поглощения. В зависимости от эксперимента необходимо использовать детекторы разных толщин. При этом желательно измерить толщины детекторов не в процессе эксперимента, а во время его подготовки в лабораторных условиях, так как пучковое время ускорителя имеет большую стоимость. Желательно, поэтому, разработать метод определения толщин детекторов без использования ускорителя частиц.

В [1] мы показали, как можно определять толщины детекторов в лабораторных условиях, используя образцовый  $\gamma$ -источник  $^{137}\text{Cs}$ . Идея метода основана на изменении формы комптонового спектра и спектра конверсионных электронов в зависимости от толщины детекторов. При этом по изменению формы комптоновских спектров можно определить толщины детекторов от  $\sim 1$  мм и выше, а по конверсионным электронам – от  $\sim 1$  мм и ниже (до  $\sim 300$  мкм). Толщины толстых детекторов ( $>4$  мм) можно определять по величине пиков полного поглощения.

В [2] нами описан метод определения толщины кремниевых детекторов на потоке быстрых монохроматических нейтронов от нейтронного генератора. В этом методе используются ядерные реакции (n,p) и (n, $\alpha$ ) на  $^{28}\text{Si}$ ,



интенсивность которых при прочих равных условиях зависит от объема чувствительной области детектора а, следовательно, и от толщины. Реально нами опробован этот метод на детекторах толщиной 0.5 мм и выше. Этот метод, кроме того, дает информацию о качестве детектора по всей глубине.

Здесь нами предлагается лабораторный метод определения толщины детекторов с использованием сплошного  $\beta$ -спектра (например, от источника  $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$ ).

### ОПИСАНИЕ МЕТОДА

Желательно иметь  $\beta$ -излучатель с достаточно большой величиной максимальной энергии частиц  $E_0$ . Кроме того, для практического использования удобен источник с большим периодом полураспада. Этим требованиям удовлетворяет источник:  $^{90}\text{Sr} \rightarrow ^{90}\text{Y}$ . Он имеет две компоненты  $\beta$ -спектра с максимальными энергиями 0.55 МэВ и 2.28 МэВ. Низкоэнергетический спектр легко отфильтровать поглотителем и тогда форма спектра имеет вид, показанный на рис. 1 сплошной линией при условии, что все  $\beta$ -частицы поглощаются в детекторе. После поглотителя (1мм полиэтилена) максимальная энергия  $\beta$ -частиц  $E_0$  будет равна 2.03 МэВ. Частицы с такой энергией будут полностью поглощаться в кремнии, если его толщина будет не менее 4.09 мм. Если детектор будет иметь толщину меньше 4.09 мм, то не все  $\beta$ -частицы будут поглощаться в детекторе. Начиная с некоторой энергии (на рис. 1 она обозначена как 2)  $\beta$ -частицы будут покидать детектор, оставляя в нем только часть энергии, и спектр будет искажаться. Такой искаженный спектр на рис. 1 показан штриховой линией.

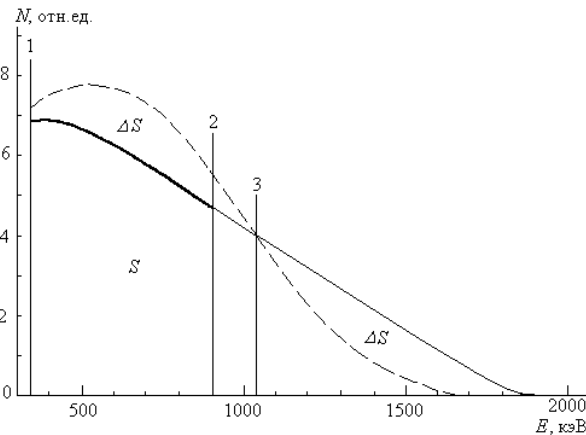


Рис. 1. Сравнение сплошных  $\beta$ -спектров с полным поглощением энергии (сплошная кривая) в детекторе толщиной  $\geq 4.09$  мм с неполным поглощением в высокоэнергетической части спектра (штриховая кривая) в детекторе толщиной  $< 4.09$  мм. 1 – энергетический порог регистрации спектрометра; 2 – энергия  $E_0$   $\beta$ -частиц, выше которой частицы не полностью поглощаются в детекторе; 3 – точка пересечения огибающих двух спектров  $E_{пер.}$ ; S – общее количество частиц, зарегистрированных каждым детектором;  $\Delta S$  – площади между сплошной и пунктирной кривыми (площади «линз»)

Совмещенные спектры от детекторов с толщинами больше 4.09 мм и меньше 4.09 мм, в которых набрано одинаковое количество событий, образуют характерные фигуры. Огибающие спектры пересекаются в некоторой точке (на рис. 1 она обозначена как 3). Между огибающими спектрами образуются линзообразные области, площади которых  $\Delta S$  равны друг другу. Для детектора с другой толщиной точка пересечения огибающих двух спектров сместится по энергии, и площади «линз» изменятся. Эти особенности мы положили в основу метода измерения толщин детекторов с использованием сплошного  $\beta$ -спектра.

### ИЗМЕРЕНИЕ ТОЛЩИН ДЕТЕКТОРОВ

Для измерения толщин детекторов методом совмещения энергетических спектров необходимо иметь детектор с толщиной более 4.09 мм и несколько детекторов с заранее известными толщинами менее 4.09 мм. Точки пересечения огибающих спектров детекторов разной толщины будут в разных местах спектра. Построив зависимость толщин детекторов от значения энергий в точках пересечения огибающих спектра, получим кривую, с помощью которой можно определять толщины других детекторов. Для калибровки метода мы использовали два детектора фирмы CANBERRA с известными толщинами 0.51 и 0.70 мм. Кроме них мы имели детекторы толщиной в 1.26 и 1.70 мм (по измерениям на нейтронном потоке) и один детектор с толщиной более 4.09 мм. Логично предположить, что для детектора с толщиной  $\geq 4.09$  мм гипотетическая точка пересечения должна быть при энергии 2.03 МэВ, а для детектора с нулевой толщиной точка пересечения огибающих спектров должна быть при нулевой энергии. Проведя сопоставление спектров, измеренных указанными детекторами при соблюдении равенства общего количества зарегистрированных частиц, мы получили возможность определения параметров искомой зависимости. Результат измерений и показан на рис. 2.

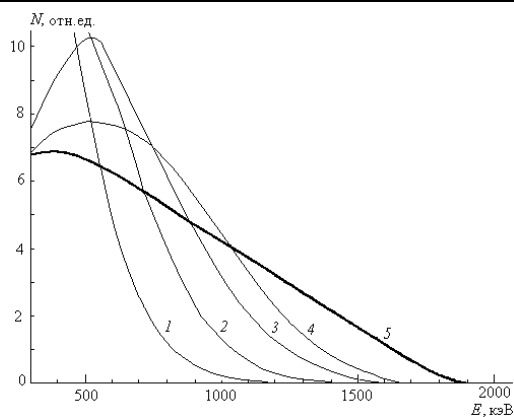


Рис. 2. Характер изменения сплошных  $\beta$ -спектров для детекторов разных толщин, мм: 1 – 0.51; 2 – 0.70; 3 – 1.26; 4 – 1.70; 5 – 4.09.

Жирной линией на рисунке показана форма спектра, полученная на толстом детекторе с полным поглощением всех  $\beta$ -частиц. Максимальная толщина детекторов с полным поглощением составляет 4.09 мм. Если детектор имеет толщину меньше 4.09 мм, то огибающая спектра будет пересекать жирную линию. Чем тоньше детектор, тем ближе к началу спектра будет точка пересечения. Заметим, что все спектры должны быть получены при идентичных условиях: одинаковое количество зарегистрированных частиц и одинаковая калибровка по энергии. На рис.3 показана зависимость энергии пересечения  $E_{\text{п}}$  от толщины детекторов.

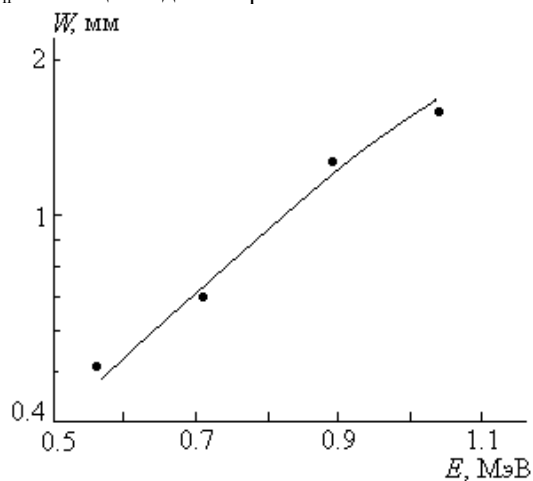


Рис. 3. Зависимость между толщиной  $W$  детектора и энергией пересечения огибающих спектров  $E_{\text{пер}}$ .

Отсутствие детекторов с толщинами более 2 мм не позволило детализировать поведение кривой  $W - E_{\text{пер}}$ . Точность определения толщин детекторов будет зависеть от точности определения энергии пересечения спектров  $E_{\text{пер}}$ . На нижнем участке кривой эта точность приведет к ошибке  $\sim 10\%$ . На верхнем участке сложнее определить энергию пересечения т.к. огибающие спектров пересекаются под меньшим углом. Это обстоятельство приведет к увеличению ошибки до  $\sim 18\%$ . По нашей оценке диапазон измерения толщин детекторов этим методом может составить  $\sim 0.4-3$ мм.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представленная здесь методика определения толщин детекторов заряженных частиц с использованием сплошного спектра  $\beta$ -частиц пополняет количество ядерно-физических методов разработанной для этой цели. Метод не требует сложной аппаратуры: достаточно иметь стандартную спектрометрическую линейку – преусилитель, усилитель и анализатор спектров.

1. Артемов С. В. Метод определения толщин обедненного слоя кремниевых детекторов заряженных частиц / С. В. Артемов, Г. А. Радюк, А. А. Караходжаев, Я. С. Абдуллаева, В. П. Якушев // Известия РАН, Сер. Физ. 2009, Т. 73, №4, С. 529-532.
2. Артемов С. В. Энергетическое разрешение кремниевых детекторов заряженных частиц / С. В. Артемов, Г. А. Радюк, А. А. Караходжаев, Я. С. Абдуллаева, В. П. Якушев // Известия РАН, Сер. Физ. 2011, Т. 75, №7, С. 1070-1072.

**ОЧИСТКА И СТЕРИЛИЗАЦИЯ ПРОМЫШЛЕННО-БЫТОВЫХ СТОЧНЫХ ВОД ИМПУЛЬСНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ НАНОСЕКУНДНОЙ ДЛИТЕЛЬНОСТИ**

Ремнев Г. Е.\*, Степанов А. В.\*, Войно Д. А.\*\*, Егоров И. С.\*, Кайканов М. И.\*, Маслов А. С.\*\*, Меринова Л. Р.\*,  
 Попов А. В.\*\*, Сярг Б. А.\*\*, Шиян Л. Н.\*

\*Национальный исследовательский Томский политехнический университет, г. Томск, Россия

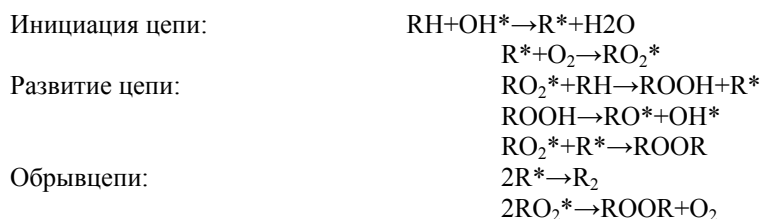
\*\*ООО «Газпром Трансгаз Томск», г. Томск, Россия

**ВВЕДЕНИЕ**

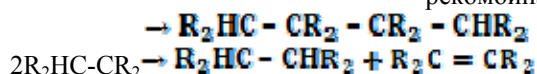
Рост промышленных мощностей организаций различных областей народного хозяйства, обусловленный, в частности, быстрым приростом численности населения, ведет к образованию больших объемов загрязненных промышленных, хозяйственно-бытовых сточных вод. Данная тенденция стимулирует развитие новых экономически выгодных технологий обработки промышленных сточных вод для снижения в них содержания опасных для здоровья населения и окружающей среды загрязняющих веществ. Особое место среди существующих методов обработки загрязненных сточных вод представляют радиационные технологии, что обусловлено отсутствием необходимости применения в технологическом цикле дополнительных химических реагентов, поскольку химически активные вещества образуются непосредственно при радиоллизе обрабатываемого раствора под воздействием ускоренных электронов.

Основной результат воздействия излучения на водные растворы заключается в окислении, формировании нерастворимых компонентов, коагуляции коллоидных структур, а также стерилизации. Основными химически активными частицами при радиоллизе воды являются гидроксильный радикал  $\text{OH}^*$ , атомарный водород  $\text{H}^*$ , а также гидратированный электрон.

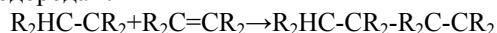
*Цепное окисление.* Реализация процесса цепного окисления присутствующих в воде загрязняющих компонентов является одним из эффективных процессов удаления нежелательных примесей при радиоллизе сточной воды. Радиационное окисление при умеренных дозах ведет к наработке в растворе карбонильных, карбоксильных, гидроксильных либо пероксидных групп. Основной механизм цепного окисления состоит из следующих основных этапов:



*Образование нерастворимого осадка.* Многие органические примеси в воде могут быть переведены в нерастворимый осадок под воздействием излучения, обуславливающего формирование высокомолекулярных соединений. Образование высокомолекулярных соединений под действием ионизирующего излучения реализуется за счет рекомбинации радикалов, нарабатываемых при облучении примесей в воде:



Образовавшиеся радикалы участвуют в реакциях димеризации, либо диспропорционирования. В воде вероятнее протекание реакции димеризации. Рекомбинация радикалов завершается реакцией присоединения к ненасыщенным углеводородам:



Высокая концентрация ненасыщенных молекул в сточной воде может привести к формированию полимеров при циклическом повторении указанных реакций.

В целом, воздействие электронного пучка является наиболее перспективным методом обработки сточных вод, поскольку имеет следующие преимущества [1]:

- экологическая безопасность использования электронных ускорителей
- одновременное воздействие на все показатели воды (органолептические, биологические, химические);
- отсутствие дорогостоящих расходных компонентов, в том числе химических добавок;
- многофакторное воздействие на все химические примеси;
- поражение микроорганизмов всех видов (бактерий, вирусов);
- простота управления степенью очистки посредством увеличения/снижения дозы облучения.

Первый крупномасштабный технологический цикл обработки промышленных сточных вод был создан в Российской Федерации, г. Воронеж, на резиноперерабатывающем заводе. В схеме использовались две очистные линии, каждая из которых была оснащена ускорителем электронов мощностью по 50 кВт. Использование электронного излучения позволило производить конверсию не биоразрушимые загрязнения в форму биологически разрушимых компонентов. Необходимая для данных целей доза достигала величину 300 кГр. Объем перерабатываемой сточной воды составлял 2000 м<sup>3</sup>.

Современные технологии электронно-лучевой обработки основаны на ускорителях типа ЭЛВ. Данные ускорители разработаны и построены в институте ядерной физики имени Г. И. Будкера СО РАН [4], а также в НИИ Электрофизической аппаратуры города С.-Петербурга.

Ускорители типа ЭЛВ относятся к классу ускорителей непрерывного действия и имеют следующие параметры: диапазон энергий 0,2÷1,5 МэВ; максимальный ток электронного пучка 50÷200 мА; мощность выведенного электронного пучка от 20÷400 кВт.

Пилотная установка обработки промышленных стоков красильной фабрики с производительностью до 1000 м<sup>3</sup>/день на основе ускорителя была разработана и внедрена в эксплуатацию в Южной Корее, г. Дигу, в 1998 г. В схеме использовался ускоритель на 1 МэВ с мощностью по электронному пучку до 40 кВт. Установка сочетается с блоком биологической обработки воды.

В США эффективность использования радиационных технологий для очистки загрязненной воды была продемонстрирована в 1994 году компанией HVEA (Применение высоких напряжений для окружающей среды, Инк.). Обработке подвергалась грунтовая вода, насыщенная газообразными органическими загрязнениями. Данные исследования были нацелены на разработку технологии на основе пучков ускоренных электронов. В качестве блок-бокса, в котором размещался технологический ускоритель электронов, использовался трейлер, 2,4 м на 14,6 м. Максимальная степень очистки наблюдалась для трихлорэтилена и тетрахлорэтана, достигавшая значений 98% и 99% соответственно.

### ОБРАБОТКА СТОЧНОЙ ВОДЫ ИМПУЛЬСНЫМ СИЛЬНОТОЧНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ

Большой интерес представляют исследования неравновесных процессов очистки от органических примесей в воде, реализуемых при воздействии импульсных электронных пучков. При высокой импульсной мощности поглощенной энергии возможно достижение более высокой степени разложения примесей при меньшей удельной поглощенной энергии. Использование импульсных электронных ускорителей целесообразно для обработки сточных вод с производительностью до 1 м<sup>3</sup>/ч. Это обусловлено тем, что при субмикросекундных длительностях импульса, мощность электронного излучения достигает гигаваттных величин, что на несколько порядков выше мощности непрерывных электронных ускорителей. Средняя мощность сравнима со средней мощностью для непрерывных ускорителей.

Авторами разработана опытная установка для очистки и обеззараживания хозяйственно-бытовых сточных вод на базе импульсного сильноточного электронного ускорителя. Ускоритель имеет следующие параметры: энергия электронов – до 400 кэВ, выведенная энергия пучка – 10 Дж, длительность импульса электронного тока – 20 нс на полувысоте, частота следования импульсов – от 1 до 50 имп/с. Полная потребляемая мощность установки, с учетом всего дополнительного оборудования, составляет 10 кВт. Конструкция импульсного электронного ускорителя, а также характерные осциллограммы выходного напряжения и тока электронного пучка показаны на рисунке 1.

Преимуществом ускорителей с энергией генерируемого электронного пучка до 400 кэВ является возможность применения местной радиационной биологической защиты, т.е. отсутствует необходимость возведения помещений, имеющих усиленную радиационную защиту. Это также может обеспечить мобильность установки.

Импульсный электронный ускоритель состоит из высоковольтного магнитного импульсного генератора (МИГ), двойной формирующей линии (ДФЛ) с масляной изоляцией, искрового высоковольтного газового разрядника (ИР), вакуумной системы (ВС), диодной пушки (ДП), камеры обработки сточной воды (КО) и источника силового питания и управления. Источник питания обеспечивает зарядку емкостных накопителей, расположенных в генераторе импульсного напряжения. МИГ формирует импульс напряжения амплитудой до 500 кВ и производит зарядку двойной формирующей линии, при этом происходит сжатие передаваемой энергии во времени и увеличение мощности импульсов напряжения. Работа МИГа основывается на нелинейных магнитных свойствах коммутационного элемента схемы генератора – магнитного дросселя насыщения. Коммутируя энергию при передаче ее между звеньями генератора, работа дросселя насыщения обеспечивает так называемое магнитное сжатие импульса напряжения, способствуя повышению электрической прочности используемых в генераторе изоляционных материалов. Длительность генерируемых МИГом импульсов напряжения составляет порядка 700 нс, при длительности первичного зарядного импульса 20 мкс.

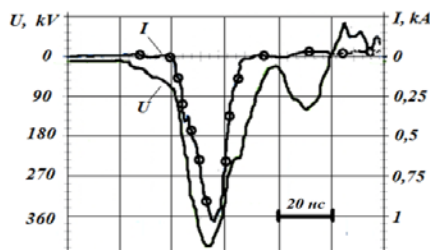
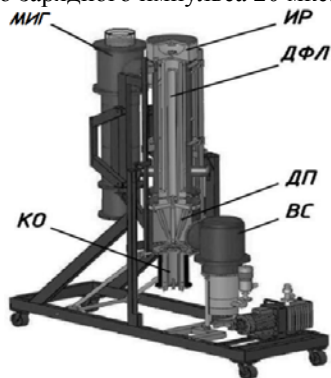


Рисунок 1. а-конструкция импульсного электронного ускорителя, б -осциллограммы ускоряющего напряжения  $U$  и тока электронного пучка  $I$ . МИГ – магнитный импульсный генератор, ДФЛ – двойная формирующая линия, ИР – искровой высоковольтный неуправляемый разрядник, ВС – вакуумная система, ДП – диодная пушка, КО – камеры обработки сточной воды.

По достижению на ДФЛ напряжения амплитудной величины, происходит срабатывание газонаполненного искрового разрядника, работающего в режиме самопробоя. При срабатывании газового разрядника формирующая линия генерирует ускоряющий импульс напряжения на диод. В результате происходит генерация электронного пучка. Формирование электронного пучка основано на явлении взрывной эмиссии электронов.

При плотности тока электронного пучка 20 А/см<sup>2</sup> средняя плотность энергии составляет 0,2 Дж/см<sup>2</sup>. Обеззараживание различных видов микроорганизмов и бактерий происходит при плотности энергии от 0,1 Дж/см<sup>2</sup> до 5 Дж/см<sup>2</sup>. Например, для стерилизации от дизентерийной палочки достаточно нескольких десятых долей Дж/см<sup>2</sup>. В этот же диапазон укладывается требуемая плотность энергии для очистки сточных вод от различных видов загрязнений.

Исходная сточная вода предварительно отстаивалась в накопительном баке. Для сокращения времени седиментации сточной воды использовался коагулянт оксихлорид алюминия, что приводило к увеличению в обработанной сточной воде содержания хлорид – ионов и сухого остатка, но при этом концентрации этих веществ оставалась в пределах ПДК.

В некоторых из экспериментов действию электронного пучка подвергалась водо-воздушная смесь, которая формировалась совместной подачей непосредственно в зону обработки воды и воздуха. При барботаже плотность обрабатываемой смеси уменьшается, что способствовало увеличению длины пробега электронов в веществе. Относительное содержание воздуха в воде изменялась в пределах от 0.5:1 до 2:1. Следует также отметить, что под воздействием электронного пучка в водо-воздушной смеси эффективно нарабатывается озон, который является одним из сильнейших окислителей. Это приводит к интенсификации химических процессов с участием загрязняющих примесей, в частности окислительных процессов с металлами, выпадения в осадок соответствующих окислов, что определяет процесс очистки.

Предварительно был определен диапазон поглощенных доз, при котором происходит оптимальное изменение химического состава сточной воды под действием электронного пучка. Диапазон доз составляет от 1×10<sup>5</sup>Р до 3×10<sup>6</sup>Р.

В таблице 1 приведены типовые результаты химического анализа исходной и обработанной сточной воды. Как видно, в пробах обработанной сточной воды происходит улучшение органолептических показателей, т. е. обработанная вода становится бесцветной, без выраженного запаха. Наблюдается снижение концентраций показателей ХПК и БПК, что говорит об уменьшении суммарного содержания в воде органических веществ. В среднем, концентрации ХПК, БПК, и взвешенных веществ снижаются на 40 ÷ 80 %. Концентрации следующих веществ: фенолы, нефтепродукты, поверхностно-активные вещества (АПАВ), железо общее после обработки соответствуют требованиям ПДК для воды водных объектов, имеющих рыбохозяйственное значение (ОБУВ от 28.04.99 N 96).

Барботирование воздухом сточной воды позволяет увеличить прозрачность (по Снеллену) до 6 см, снизить концентрации азота нитратного и нитрат ионов. Увеличение объема расходуемого воздуха на 1 м<sup>3</sup> воды с 0,1 до 0,6 м<sup>3</sup> приводило к более эффективному снижению концентрации железа до 8÷10% от первоначального уровня, концентрации остальных веществ значительно не менялись.

Увеличение дозы облучения за счет снижения расхода сточной воды, так же как и барботирование воздухом для указанного водного раствора (таб. 1) не позволило уменьшить в сточной воде концентрации примесей до ПДК (ОБУВ от 28.04.99 N 96) следующих показателей: БПК<sub>5</sub> и азотосодержащих веществ (ионы аммония, нитритные и нитратные ионы).

По результатам бактериологического анализа так же происходит стерилизация сточной воды (таб.2). Доза при обработке составляла 5 кГр. Обязательным условием для получения данного результата – обработка всего объема воды.

Таблица 1. Результаты химического анализа исходной и обработанной сточной воды

№	Определяемая характеристика	Исходная вода	Обработанная вода	ПДК <sup>1)</sup>
1	Запах	Фекальный	Без запаха	–
2	Окраска	Серый	Бесцветная	–
3	Плавающие примеси	Нет	Нет	–
4	Прозрачность (по Снеллену), см	<1,0	3,0	–
5	Взвешенные вещества, мг/дм <sup>3</sup>	45,0	5,0	0,25 <sup>2)</sup>
6	Сухой остаток, мг/дм <sup>3</sup>	503,0	514,0	1000
7	Водородный показатель, рН	7,4	7,7	6,5 – 8,5
8	ХПК, мгО/дм <sup>3</sup>	30,0	20,0	15
9	БПК <sub>5</sub> , мгО/дм <sup>3</sup>	14,7	9,6	2
10	Азот аммонийный, мг/дм <sup>3</sup>	19,8	18,3	Суммарно по азоту 0,5
	Аммоний-ион, мг/дм <sup>3</sup>	25,5	23,5	
11	Азот нитритный, мг/дм <sup>3</sup>	<0,01	0,25	0,02
	Нитрит-ион, мг/дм <sup>3</sup>	<0,03	0,82	0,08
12	Железо общее, мг/дм <sup>3</sup>	1,2	0,2	0,05
13	Хлорид-ион (Сl), мг/дм <sup>3</sup>	32,7	33,5	300
14	Сульфат-ион (SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> ), мг/дм <sup>3</sup>	25,6	36,1	100
15	Азот нитратный, мг/дм <sup>3</sup>	<0,02	0,14	9,1
	Нитрат-ион, мг/дм <sup>3</sup>	<0,1	0,61	40,0

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

16	Фосфаты (PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> ), мг/дм <sup>3</sup>	4,30	1,57	0,1
	Фосфор фосфатный	1,402	0,512	0,1
17	Фенолы (летучие), мг/дм <sup>3</sup>	0,009	<0,001	0,001
18	Нефтепродукты (суммарно), мг/дм <sup>3</sup>	0,19	0,05	0,05
19	Поверхностно-активные вещества (АПАВ), мг/дм <sup>3</sup>	0,489	<0,015	>4 <sup>2)</sup>

1) ПЕРЕЧЕНЬ рыбохозяйственных нормативов: предельно допустимые концентрации (ПДК) и ориентировочно безопасные уровни воздействия (ОБУВ) вредных веществ для воды водных объектов, имеющих рыбохозяйственное значение от 28.04.99 N 96

2) СанПиН 2.1.5.980-00 Водоотведение населённых мест, санитарная охрана водных объектов. Гигиенические требования к охране поверхностных вод.

Таблица 2. Результаты биологического анализа исходной и обработанной воды

Наименование показателей		Единица измерения	ПДК	Фактическое значение	НД
Лактозо-положительные кишечные палочки	Общие колиформные бактерии	Число бактерий в 100 мл	Не допускается	Не обнаружено	МУК 4.2.1018-01
	Термотолерантные колиформные бактерии	Число бактерий в 100 мл	Не допускается	Не обнаружено	МУК 4.2.1018-01
Общее микробное число		КОЕ	В 1 мл не более 50	10 КОЕ	МУК 4.2.1018-01
Колифаги		В 100 мл воды	Не допускается	Не обнаружено	МУК 4.2.1018-01

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе полученных результатов можно сделать вывод, что в качестве источника ионизирующего излучения в технологических схемах очистки сточной воды с производительностью до 1 м<sup>3</sup>/час возможно использовать разработанный импульсный сильноточный электронный ускоритель. Кинетическая энергия ускоренных электронов составляет порядка 400 кэВ. Частота следования импульсов регулируемая – от 1 до 50 имп./с. Выведенная энергия электронного пучка составляет 10 Дж. Изменение режимов обработки, ведущее к изменению поглощенной дозы, позволяет достигать различные степени очистки сточной воды. Организация водо-воздушной смеси интенсифицирует процесс окисления растворенных в воде веществ, что способствует очистке ее от примесей. Кроме того, происходит полная стерилизация обрабатываемых сточных вод.

Применение импульсного режима работы ускорителя позволяет снизить затраты на используемые в конструкции ускорителя изоляционные материалы за счет повышения их электрической прочности при длительности рабочего напряжения менее 1 мкс. Кроме того, отсутствуют дополнительные затраты на сооружение дополнительного помещения с усиленной радиационной защитой, поскольку при ускорении электронов до 500 кэВ эффективным является использование местной радиационной защиты. Таким образом, обеспечивается мобильность установки.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Пикаев А. К. // Современная радиационная химия. Основные положения. Экспериментальная техника и методы, М.: Наука, 1985.
2. Пикаев А. К. Современная радиационная химия. Радиолит газы и жидкостей, М.: Наука, 1986.
3. Пикаев А.К. // Химия высоких энергий. 2001. Т.35. №5. С.346.
4. Radiation processing: environmental applications.-Vienna: International Atomic Energy Agency, 2007.
5. Салимов Р.А. // Успехи физических наук.2000., Том 170. №2. С.197-201.
6. Cooper W.J., Curr, R.D., O'Shea K.E. // Environmental Applications of Ionizing Radiation, John Wiley, 1998.
7. Han B., Kim J.K., Makarov I.E., Ponomarev, A.V.// "Electron beam treatment of textile dyeing wastewater: operation of pilot plant and industrial plant construction", Proc., of IAEA Tech. Meeting, IAEA-TECHDOC-1473, 2004, pp. 101-110.
8. High Voltage Environmental Applications, Inc., "Electron beam technology-innovative technology evaluation report", EPA/540/R-96/504 August 1997.
9. Sampa M.H., et al. // "Treatment of industrial effluents using electron beam accelerator and adsorption with activated carbon: a comparative study", Radiation Physics and Chemistry 71, 2004, pp. 457-460.

*Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry*  
**ПРОИЗВОДСТВО ЗАКРЫТЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ИСТОЧНИКОВ ДЛЯ  
 РЕНТГЕНОРАДИОМЕТРИЧЕСКОГО АНАЛИЗА**

С.Х. Егамедиев  
 Институт Ядерной Физики АН РУз, Ташкент, Республика Узбекистан

РФА широко используется для качественного и количественного элементного анализа геологических, биологических, промышленных и других образцов. По сравнению с такими методами анализа, как Атомно-абсорбционная спектроскопия (ААС), Атомно-эмиссионная спектрометрия (АЭС-ICP), Масс-спектрометрия (ICP-MS) РФА является более предпочтительным по ряду параметров – неdestructивность, экспрессность и малая стоимость анализа. РФА обеспечивает примерно одинаковый предел обнаружения для большинства элементов периодической системы и позволяет определять элементы в широком диапазоне концентраций – от 100% до  $10^{-3}$  –  $10^{-4}$ % масс. Рентгенофлуоресцентный метод (РФА) анализа заключается в возбуждении характеристического излучения атомов анализируемого образца, определении атомного номера и концентрации соответствующего химического элемента по энергии и интенсивности этого излучения. Широко распространенным способом возбуждения характеристического излучения является облучение образца рентгеновским или низкоэнергетическим гамма-излучением радионуклидов с помощью закрытых радиоактивных источников [1]. Для анализа с чувствительностью (до  $10^{-20}$ %) элементов с атомным номером от 12 до 94 достаточно четырех наиболее часто применяемых радионуклидов:  $^{55}\text{Fe}$  (энергия излучения ~5,9 кэВ),  $^{57}\text{Co}$  (122 кэВ),  $^{109}\text{Cd}$  (22,1 кэВ),  $^{241}\text{Am}$  (59,5 кэВ).

Таблица 1 Ядерно-физические свойства радионуклидов, используемых в РФА

Радионуклид	Период полураспада	Возбуждающее излучение	Анализируемые элементы		Активность источника, мКи
			Порядковый номер	Серия	
$^{57}\text{Co}$	270 дней	$\gamma$ , 122 кэВ	45-92	K	10-300
$^{109}\text{Cd}$	453 дня	$\text{Ag}, K_{\alpha}$ , 22,1 кэВ	24-44 73-92	K L	5-50
$^{55}\text{Fe}$	2,6 года	$\text{Mn}, K_{\alpha}$ , 5,9 кэВ	19-24	K	5-10
$^{241}\text{Am}$	453 года	$\text{Np}, L_{\alpha,\beta}$ , 13,9-16,8 кэВ, $\gamma$ , 59,6 кэВ	24-35 73-92 50-69	K L K	20

Главное достоинство радионуклидных источников заключается в их независимости от электропитания, малогабаритности, возможности размещения в труднодоступных местах технологического оборудования, возможности создавать поле излучения заданных размеров и конфигурации. Закрытый радионуклидный источник ионизирующих излучений – это источник, конструкция которого препятствует взаимным контактам радиоактивного вещества и окружающей среды и исключает её загрязнение радиоактивным веществом выше допустимого действующими нормами уровня в условиях, предусмотренных для использования источника. Таким образом, при разработке конструкций и технологии изготовления радионуклидных источников необходимо решить главную основную задачу: обеспечить безопасность их эксплуатации, то есть создать надёжную систему герметизации радиоактивного материала.

В настоящее время основным производителем радионуклидных источников для рентгенорадиометрического анализа является Россия [2]. Аналогичные исследования также проводятся в соседней республике Казахстан [3-5].

Узбекистан обладает мировыми запасами золота, урана, меди и других редких металлов. Государственный комитет геологии и минеральных ресурсов оценивает стоимость запасов минерального сырья в 3,5 триллиона долларов. Для эффективной работы, в этом ключевом секторе экономики требуется оборудование для анализа сырья. В советские времена, геологические компании Узбекистана были оснащены рентгенофлуоресцентными спектрометрами, но в настоящее время этот парк приборов устарел и из-за недостатка поддержки значительная часть приборов не работает и не используется. В настоящее время компании, такие как Canberra Industries, Ortek, Tennelec и др. выпускают новые портативные приборы для РФА анализа, которые могут найти применение в горнодобывающей промышленности Узбекистана. Однако сложность комплектации этих приборов источниками возбуждения сдерживает этот процесс. Необходимые источники изотопов не могут быть импортированы, так как транспортировка радиоактивных источников через границу и таможенные процедуры очень сложны.

При финансовой поддержке фонда CNCP было закуплено лабораторное оборудование и установка для аргоно-дуговой сварки. Созданная инфраструктура была использована для разработки технологии приготовления закрытых источников на основе радионуклидов кобальт-57 и кадмий-109.

Следует также отметить, стоимость комплекта из двух закрытых источников ( $^{57}\text{Co}$ ,  $^{109}\text{Cd}$ ) с активностью 20 мКи оценивается примерно в 2000 долл. США.



Целью настоящей работы является разработка технологии приготовления закрытых радионуклидных источников гамма-излучения на основе циклотронных радионуклидов кобальт-57 и кадмий-109 и организация их производства в ИЯФ АН РУз.

В ходе выполнения данного исследования предполагалось решить следующие задачи:

- усовершенствовать радиохимический процесс выделения и очистки радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$ .
- разработать и определить оптимальные условия для сорбции радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$  на модифицированном бентоните.
- разработать и определить оптимальные условия для фиксации радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$ .
- определить оптимальные условия для герметизации радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$  в титановую капсулу.
- разработать метод проверки герметизации закрытых источников.

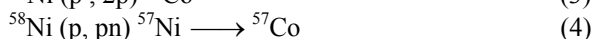
Выполнение вышеуказанных задач данного исследования позволят создать основу для разработки технологии приготовления закрытых источников гамма-излучений на основе радионуклидов кобальт-57 и кадмий-109 для усовершенствования методов рентгенофлюоресцентного анализа и контроля технологических процессов.

Для получения кобальта-57 обычно используют железные и никелевые мишени [6]. Образование  $^{57}\text{Co}$  из железной мишени происходит по ядерным реакциям:



При облучении железа дейтронами кроме  $^{57}\text{Co}$  образуются значительное количество примесей кобальта-56 и кобальта-58, которые радиохимически не отделяются, и ряд других долгоживущих радионуклидов, что сильно усложняет технологию выделения кобальт-57.

В случае облучения никелевой мишени протонами с энергией  $E_p \sim 20$  МэВ радионуклид  $^{57}\text{Co}$  образуется по ядерным реакциям:



Из реакций (3,4) видно, что после 15-20 дней выдержки облученной мишени, во-первых, происходит накопление радионуклида  $^{57}\text{Co}$  за счёт распада  $^{57}\text{Ni}$  ( $T_{1/2} = 37$  час.), во-вторых, за это время большинство конечных продуктов сопутствующих реакций превращаются в стабильные изотопы  $^{58}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Ni}$ ,  $^{61}\text{Ni}$  и  $^{57}\text{Fe}$ , которые легко отделяются при радиохимической переработке. Кроме реакций идущих на никеле, протекает реакция образования побочного радионуклида  $^{65}\text{Zn}$  на материале подложки мишени – меди. Таким образом, основной задачей радиохимического выделения целевого радионуклида является отделение  $^{57}\text{Co}$  от макроколичеств никеля, железа, меди и радионуклида цинка-65.

Нами была разработана радиохимическая схема выделения и очистки радионуклида кобальт-57. Были найдены наилучшие условия для быстрого растворения никелевой мишени. Установлено, что никелевая фольга (0,5 г) полностью растворяется за 5 минут без нагревания в растворе бромистоводородной кислоты 6,3 моль/л с добавлением 2-3 капель 25% перекиси водорода. После растворения материала мишени в 6,3 моль/л бромистоводородной кислоты с добавлением нескольких капель перекиси водорода радионуклид кобальт-57 отделялся от никеля, меди, железа и других элементов методом анионообменной хроматографии. Раствор мишени в бромистоводородной кислоте 6,3 моль/л пропускать через колонку содержащую анионообменную смолу Дауэкс 1×8 (100-200 меш, высота 7 см × 0,8 см диаметр) промытую раствором той же кислоты. В этих условиях никель не сорбируется на смоле и проходит через колонку. Медь и железо хорошо удерживаются на колонке от 3 до 6 моль/л НВг. Кобальт-57 также удерживается и в конце элюируется 50 мл 3 моль/л бромистоводородной кислоты. Полученный раствор выпаривается досуха и после добавления 1 мл 11,3 моль/л HCl процесс выпаривания повторяется. После выпаривания сухой остаток растворяется в 0,1 моль/л HCl. Выход кобальта-57 был 98,7%. Радионуклидная чистота была более чем 99,8%. Таким образом, предложенная методика позволяет получить продукт с высокой химической и радионуклидной чистотой.

Ядерные реакции используемые для наработки радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  приведены в таблице 2. Радионуклид кадмий-109 может быть получен при облучении мишени из серебра на классическом циклотроне ускоренным пучком протонов, дейтонов и  $\alpha$ -частиц. Как видно из таблицы 2 ядерная реакция с использованием дейтонов отличается наибольшим выходом по целевому радионуклиду. Выход  $^{109}\text{Cd}$  по этой ядерной реакции составляет при энергиях дейтонов в пределах 20 МэВ составляет примерно 6,1 мКи/мка · ч [6]. При облучении серебряной мишени дейтонами на циклотроне кроме целевого радионуклида кадмий-109 образуются долгоживущий радионуклид  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  ( $T_{1/2} = 270$  дней) по ядерной реакции  $^{109}\text{Ag}(d,p)^{110\text{m}}\text{Ag}$ . Необходимо учитывать образование радионуклида  $^{65}\text{Zn}$  на материале подложки мишени-меди, который образуется в результате ядерной реакции  $^{65}\text{Cu}(d, 2n) ^{65}\text{Zn}$ . Для наработки радионуклида кадмий-109 без носителя нами была использована ядерная реакция  $^{109}\text{Ag}(d, 2n)^{109}\text{Cd}$ .

Таблица 2 Ядерные реакции используемые для наработки радионуклида  $^{109}\text{Cd}$

Ядерная реакция	Энергия частицы, МэВ			
	10	15	20	30
	Выход Cd-109, мКи/мка · ч			
$^{109}\text{Ag} (p, n) ^{109}\text{Cd}$	1,3	3,7	4,8	-

**Nuclear and Radiation Methods in Medicine and Industry**

$^{109}\text{Ag} (d, 2n) ^{109}\text{Cd}$	0,8	3,1	6,1	-
$^{107}\text{Ag} (\alpha, 2n) ^{109}\text{In} \rightarrow ^{109}\text{Cd}$ $^{107}\text{Ag} (\alpha, pn) ^{109}\text{Cd}$	-	-	0,2	1,3
$^{115}\text{In} (p, xn) ^{109}\text{Cd}$	$E_p = 96 \text{ МэВ}; 45,4 \text{ мКи/мКа} \cdot \text{ч}$			
$^{107}\text{Ag} (n, \gamma) ^{108}\text{Ag} \rightarrow ^{108}\text{Cd} (n, \gamma) ^{109}\text{Cd}$	Поток нейтронов до $2 \times 10^{15}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ ; 6.6 мКи при облучении обогащенного $^{107}\text{Ag}$ весом 26.4 мг			
$^{108}\text{Cd} (n, \gamma) ^{109}\text{Cd}$	Поток нейтронов $1 \times 10^{14}$ нейтр./ $(\text{см}^2 \cdot \text{с})$ ; 96 мКи при облучении обогащенного $^{108}\text{Cd}$ весом 100 мг			

Разработано два процесса отделения микроколичеств кадмия от макроколичеств серебра. Первый способ заключался в осаждении серебра в виде хлорида серебра из азотнокислых растворов. Установлено, что при использовании 5-6 М раствора соляной кислоты в качестве реагента для осаждения серебра можно количественно отделить макроколичества серебра от микроколичеств кадмия. Вторым способом включал в себя адсорбцию серебра на полиэтиленмоносульфиде (TR-1) из растворов азотной кислоты содержащих микроколичества кадмия. Установлено, что ПЭМС количественно и селективно адсорбирует макроколичества серебра. Показано, что фактор разделения пары элементов серебро-кадмий составляет более  $10^3$ . На основании полученных результатов разработан способ получения радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  без носителя. Способ включает облучение мишеней из серебра на циклотроне дейтонами, электрохимическое растворение мишени в растворе 0,5 моль/л  $\text{HNO}_3$  азотной кислоты, отделение серебра от радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  путем селективной адсорбцией серебра на полиэтиленмоносульфиде (ПЭМС), очистку фракции радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  от цинка и меди на хроматографической колонке с анионообменной смолой Дауэкс  $1 \times 8 - 0.1$  моль/л  $\text{HBr} + 0,5$  моль/л  $\text{HNO}_3$ . Фракция кадмия-109 элюировалась 50 мл 3 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Затем раствор радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  выпаривался до суха и сухой остаток обрабатывался последовательно 2 мл концентрированной соляной кислотой и 25% перекисью водорода. После этой обработки сухой остаток растворялся в 0,1 моль/л  $\text{HCl}$ . Радиохимический выход составил более 90%.

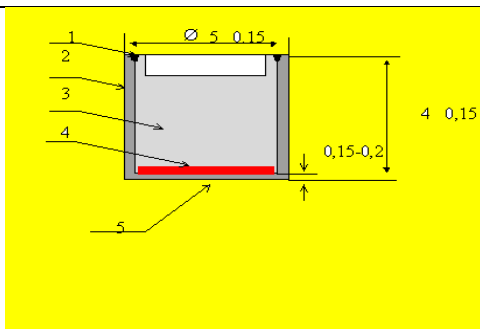
Для приготовления активной части источников применяют различные методы, включающие в себя, например выпаривание раствора радионуклида на подложке или осаждением радионуклида на ионообменной смоле [7]. Однако эти способы фиксации радионуклидов не обеспечивает надёжность работы источника, так как при повреждении корпуса капсулы возможна утечка радиоактивности в окружающую среду. Другим способом фиксации радионуклидов является метод электроосаждения его на металлическую подложку с последующей термодиффузией его в кристаллическую решетку подложки [8]. Однако этот способ фиксации радионуклида требует применения сложного технологического оборудования.

Нами разработан новый способ приготовления активной части источника включающий в себя применение предварительной адсорбции радионуклидов  $\text{Co-57}$  и  $\text{Cd-109}$  на модифицированном бентоните с последующей фиксацией их в структуре сорбента.

Разработан способ получения модифицированного бентонита, обеспечивающий наилучшие условия для адсорбции радионуклида  $^{57}\text{Co}$ . Установлено, что наибольший коэффициент распределения  $^{57}\text{Co}$  достигается после предварительной последовательной обработки бентонита растворами 3 М  $\text{HCl}$  и 1 М  $\text{H}_3\text{PO}_4$  и последующего прокалывания бентонита при 400 °С. При этом коэффициент распределения при pH 6 составляет 7622, а процент адсорбции радионуклида  $^{57}\text{Co}$  составляет 99,7 %.

Разработан способ фиксации радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$  в структуре модифицированного бентонита с помощью высокотемпературного обжига. Установлено, что после предварительной сорбции радионуклида  $^{57}\text{Co}$  на бентоните при pH 6 с последующей термообработкой при 600-800 °С можно получить надёжную фиксацию радионуклида  $^{57}\text{Co}$  в структуре бентонита. Установлено, что выщелачивание кобальта в раствор  $\text{HCl}$  с pH 2 составляет 0,01 %. Установлено, что после предварительной сорбции кадмия на бентоните при pH 8-10 с последующей термообработкой при 400-600 °С можно получить надёжную фиксацию радионуклида кадмий-109 в фазе бентонита. Установлено, что выщелачивание кадмия в раствор соляной кислоты с pH 2 составляет 0,01%.

Определены оптимальные условия для герметизации радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$  в титановую капсулу методом аргоно-дуговой сварки. В качестве конструкционного материала выбран титан ВТ5. Капсула источника представляет как единое целое с выходным окном толщиной 0,15 - 0,25 мм (рис.1). Установлено, что имитатор капсулы из титана марки ВТ5 хорошо сваривается при токе 50-60 А и расходе аргона 6-7 л/мин. Изготовлены десять экспериментальных образцов источников на основе радионуклида  $\text{Co-57}$  с активностью от 1 мКи до 50 мКи.



1 – бентонитовая таблетка с радионуклидом  $\varnothing$  4 мм ; 2 – корпус из титана ВТ5;  
3 – пробка из титана ВТ5; 4 – сварной шов  
Рисунок 1 – Конструкция корпуса источника

Разработан метод контроля герметичности закрытых источников на основе радионуклидов  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$ . Метод основан на определении активности радионуклида, перешедшего в раствор после выдержки в нём источника. В случае проверки герметичности кобальтовых источников был предложен метод адсорбционной хроматографии на оксиде алюминия, модифицированном нитрозо-R-солью для предварительного селективного выделения радионуклида  $^{57}\text{Co}$  из выщелачивающего раствора с последующим определением активности радионуклида методом гамма-спектроскопии. В случае кадмиевых источников экспериментальный образец закрытого источника  $^{109}\text{Cd}$  помещался в стакан с раствором 0,01 М  $\text{HNO}_3$  объёмом 15 мл, предварительно нагретого до (60-90) °С. Затем стакан закрывали часовым стеклом, помещали на магнитную мешалку и выдерживался в течение 15 минут в указанном растворе при постоянном нагревании (температура 70 °С). Затем раствор кислоты сливали из стакана и источник промывали 3-4 порциями по 20 мл дистиллированной воды и промывные воды смешивали с раствором кислоты. После этого раствор выпаривали до сухого остатка и остаток растворялся в смеси 0.1 моль/л  $\text{HBr}$  + 0,5 моль/л  $\text{HNO}_3$  и полученный раствор пропусклся через колонку (H=60 мм; d=9,5 мм) содержащую Дауэкс 1×8 со скоростью 1,5 мл/мин. Радионуклид кадмий-109 элюировался 50 мл 3 моль/л  $\text{HNO}_3$ . Затем раствор радионуклида  $^{109}\text{Cd}$  выпаривался до суха и затем измеряли активность. Источники считаются герметичным, если активность радионуклида перешедшая в раствор выщелачивания не превышает значения 185 Бк.

#### Литература

1. Якубович А.Л., Зайцев Е.И., Пржиялговский С.М. Ядернофизические методы анализа минерального сырья. Изд-е 2, перераб. и доп. – М.: Атомиздат, 1973.-392с.
2. Рекламный проспект АОЗТ «Циклотрон». Радионуклиды циклотронные и источники излучения на их основе. Обнинск, 2000. –10 с.
3. Arzumanov A., Chakrov P., Lyssukhin S., Sychikov G., Zheltov A. Radioisotope Production in Kazakhstan // Eurasia Nuclear Bulletin.-2003. №2. –P. 74-77.
4. Солодухин В.П., Сметанников В.В., Степанов В.М., Кабирова Г.М., Габдулин Р.М., Позняк В.Л. Радиоизотопная методика рентгенофлуоресцентного анализа золоторудных материалов // Тезисы докладов 5-ой международной конференции «Ядерная и радиационная физика» 26-29 сентября 2005, Алматы, Казахстан. С.536-537.
5. Городиская Н.М., Желтов Д.А., Князев А.М. и др. Разработка технологии и изготовление закрытых радионуклидных источников гамма-рентгеновского излучения радиоизотопа Cd-109. // Abstracts of 4<sup>th</sup> International Conference «Nuclear and radiation physics», September,15-17, 2003, Almaty, Kazakhstan. P. 483-484.
6. Дмитриев П. П. Выход радионуклидов в реакциях с протонами, дейтронами, альфа-частицами и гелием-3: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1986. –272 с.
7. Коняхин Н. А., Затолокин Б. В., Мещеряков В. Г., Тямин Г. В. Источники фотонного излучения для рентгенофлуоресцентного анализа с циклотронными радионуклидами  $^{57}\text{Co}$  и  $^{109}\text{Cd}$  // Атомная энергия. – 1988. Т.64, №2. –С. 137-140.
8. Леонов А.И., Мещеряков В.Г., Тямин Г.В. Источники гамма-излучения с  $^{57}\text{Co}$  для рентгенофлуоресцентного анализа. // Атомная энергия. –1992. –Т.72, №4. –С. 403-405.

## РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ ПРИ ФОРМИРОВАНИИ НИТРИДОВ ТИТАНА И НИОБИЯ

А.Ж.Тулешев, Ю.Ж. Тулешев, В.Н.Володин, Е.А.Жаканбаев  
Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан

Ионно-плазменное распыление металлов и последующее осаждение их на подложку в виде островковых пленок является наиболее приемлемым способом получения покрытий с нанокристаллической структурой, представляющих собой в начальный момент островковые пленки. Такие пленки относятся к ультрадисперсным системам, поверхностная энергия которых сравнима с объемной составляющей. В этой связи частицы металла в островковой

пленке, размеры которых менее некоторого критического, могут оказаться на грани, разделяющей твердое и жидкое состояние вследствие термофлуктуационного плавления, вследствие чего понижается температура синтеза металлических соединений. И, если использование размерного эффекта при получении сплавов уже находит свое применение [1-2], то сведений об его использовании при гетерофазном синтезе соединений, например, нитридов металлов к настоящему времени нет. В этой связи был произведен синтез и исследование свойств: моно-, сложных и слоистых нитридов ниобия и титана с использованием эффекта термофлуктуационного плавления металлической составляющей.

Для приготовления образцов покрытий из нитридов металлов создана ионно-плазменная установка, включающая в себя вакуумную систему, систему подачи газовой смеси, магнетронную систему осаждения и систему транспортировки образцов, разработана методика синтеза нитридов титана и ниобия с использованием эффекта термофлуктуационного плавления металлической фазы, обеспечивающая промышленно приемлемые скорости нанесения покрытий при температуре подложки до 50°C.

Для изучения сверхпроводящих свойств синтезированного нитрида ниобия использована установка для криогенных испытаний образцов, состоящая из холодильной машины Гиффорда-Мак-Магона, откачной системы с криогенной масляной ловушкой и измерительного комплекса, позволяющего регистрировать зависимость сопротивления от температуры и времени. На базе данной установки разработана методика регистрации перехода для тонких пленочных образцов, что позволило наблюдать образование в исследуемых сверхпроводящих покрытиях появление сверхпроводящей фазы.

*Исследование синтеза нитрида титана и его структуры*

Выполнен синтез фаз нитрида титана при изменении состава плазмообразующего газа. Суммарная толщина покрытия составила 1 мкм. Результаты экспериментов, а также результаты микронзондового анализа образцов нитрида титана и состав фаз покрытия приведены в таблице 1.

Таблица 1- Влияние концентрации азота в плазмообразующем газе на фазовый и химический состав покрытий из нитрида титана

Концентрация азота в плазм. газе, об. %	Концентрация азота в образце, ат. %	Наблюдаемые фазы в образце	Параметр решетки, нм
5	35,01	Ti <sub>2</sub> N	a=0,4142, c=0,8815
10	42,32	TiN	a=0,4316
15	46,82	TiN, Ti <sub>2</sub> N	a=0,43489, a=0,4139, c=0,8808

Данные рентгеновской дифрактометрии показали, что при концентрации азота 5 об. % в плазмообразующем газе синтезируется тетрагональная центрированная по основанию фаза Ti<sub>2</sub>N с табличными параметрами решетки a=0,4142 нм, c=0,8815 нм.

При концентрации азота 10 об.% в аргоне синтезированное покрытие представлено мелкокристаллизованной г.ц.к.-фазой TiN с параметром решетки a = 0,4316 нм и достаточно изотропным распределением кристаллитов.

При содержании 15 об. % азота в реактивном газе покрытие представлено смесью фаз TiN и Ti<sub>2</sub>N. Оценить ориентировочное содержание указанных фаз в покрытии не представилось возможным из-за наложения отражений TiN и Ti<sub>2</sub>N. Фаза моонитрида TiN проявляет сильную текстурированность в направлении [111] при параметре решетки равном 0,43489 нм. Параметры решетки присутствующей в образце фазы Ti<sub>2</sub>N соответствуют значениям a=0,4139 нм, c=0,8808 нм.

Рассматривая молярное содержание азота в сформированных покрытиях, следует отметить, что количество его растет не пропорционально концентрации в плазмообразующем газе. Так при увеличении количества азота с 5 об. % до 10 об. % концентрация азота в покрытии увеличивается с 35,01 ат. % до 42,32 ат. % (на 7,31 ат. %), а с 10 об. % до 15 об. % - лишь на 4,5 ат. % соответственно. Это свидетельствует о снижении степени использования азота при увеличении концентрации его в плазмообразующем газе.

Таким образом, в результате проведенных исследований определена область стабильного существования фаз нитрида титана в зависимости от содержания азота в плазмообразующем газе. Концентрационный порог образования фазы TiN соответствует содержанию азота в плазмообразующем газе 10 об. %. Полученные результаты соответствуют известным фазовым диаграммам, полученным при насыщении азотом расплавленного металла, что также косвенно свидетельствует о нахождении островковых частиц титана в состоянии термофлуктуационного плавления.

*Исследование синтеза нитрида ниобия его структуры*

Синтез фаз нитрида ниобия на перемещающуюся подложку выполнен при изменении состава плазмообразующего газа. Содержание азота в газовой смеси изменяли в пределах от 39 до 5 об. % при прочих равных условиях. При уменьшении концентрации азота в газовой смеси, используемой для синтеза нитрида ниобия с 39 об. % последовательно до 5 об. % (таблица 2) происходит изменение параметра решётки, возникающей в результате напыления.

Таблица 2- Изменение параметра решётки фазы δ<sub>1</sub>-NbN в зависимости от концентрации азота

Концентрация азота, об. %	d <sub>111</sub> , нм	d <sub>200</sub> , нм	d <sub>220</sub> , нм	a <sub>1</sub> , нм	a <sub>2</sub> , нм	a <sub>3</sub> , нм	a <sub>сред</sub> , нм

39	0,2543	0,2168	0,1501	0,4404	0,4336	0,4246	0,4329
36	0,2574	0,2202	-	0,4458	0,4404	-	-
33	0,2568	0,2196	0,1551	0,4448	0,4393	0,4380	0,4407
30	0,2574	0,2196	0,1571	0,4458	0,4392	0,4443	0,4431
27	0,2550	0,2201	0,1561	0,4417	0,4402	0,4415	0,4411
25	0,2539	0,2201	0,1555	0,4398	0,4402	0,4397	0,4399
23	0,2536	0,2198	0,1555	0,4392	0,4396	0,4398	0,4395
22	0,2536	0,2198	0,1556	0,4392	0,4396	0,4440	0,4409
20	0,2541	0,2196	0,1550	0,4401	0,4392	0,4395	0,4393
15	0,2530	0,2202	0,1547	0,4381	0,4404	0,4375	0,4386
10	0,2423	-	-	0,4127	-	-	-

Параметр решётки достигает максимального значения, равного 0,4431 нм при концентрации азота 30 % и затем при снижении концентрации азота до 15 % уменьшается до значения 0,4386 нм. Параметр решётки отожженных при 740 °С образцов при этом увеличивается от значения 0,4341 нм до 0,4386 нм.

Важным итогом проведения этого исследования стало получение твердого раствора азота в ниобии по термофлуктуационному механизму с параметром решетки  $a=0,3392$  нм непосредственно в процессе напыления при содержании 5-10 об. % азота в газе.

При концентрациях азота в плазмообразующем газе более 15 об. % отмечено образование сверхпроводящей фазы  $\delta_1$ -NbN. При достижении 30 об. %  $N_2$  фаза  $\delta_1$ -NbN становится единственно устойчивой в этих условиях – других фаз не наблюдается. Последующее увеличение содержание азота в газе сопровождается уменьшением параметра решетки, по-видимому, вследствие появления переобогащенных азотом фаз  $\epsilon$  (NbN) и  $\delta$  (NbN). Формирование покрытия из нитрида ниобия при 20 об. %  $N_2$  приводит к получению фазы  $\delta_1$ -NbN, параметр решетки которой совпадает с табличным –  $a = 0,4393$  нм.

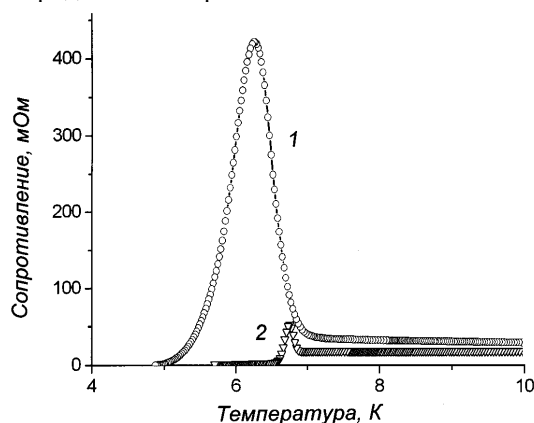
Таким образом, следует, что количество азота в газовой фазе влияет непосредственно на параметры кристаллической решетки синтезируемого нитрида ниобия, а последние, как будет показано ниже, изменяют критическую температуру перехода в сверхпроводящее состояние.

#### *Исследование электрофизических свойств пленок нитрида ниобия*

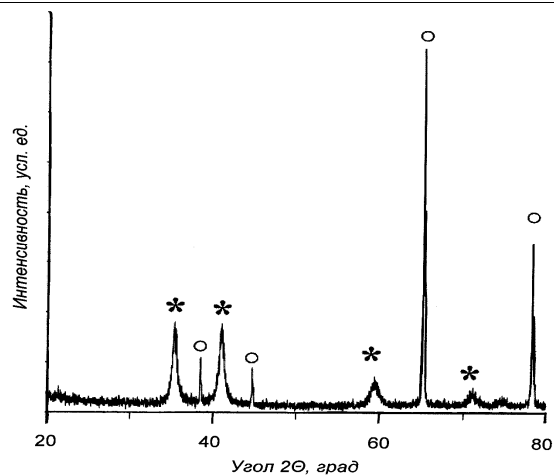
Определение зависимости электросопротивления от температуры осуществлялось стандартным методом четырехзондовых измерений с линейным расположением контактов на образце. В образцах нитрида ниобия, полученных при синтезе в плазмообразующем газе с концентрациями 20 и 25 об.% азота, осажденных на алюминиевую фольгу, в районе критического перехода наблюдается гигантский скачок сопротивления с последующим переходом в сверхпроводящее состояние (рисунок 1).

Ранее эффект наблюдался авторами других работ, но интенсивность этого явления была в несколько раз меньше чем у нас. В работе [3] эффект аномального пика сопротивления обнаружен в беспорядочных сплавах циркония и меди с магнитными примесями. Величина эффекта в этом случае составила порядка 30% от общего сопротивления. По мнению Livingston et. al. причиной возникновения аномального пика сопротивления явилась неоднородность материала и присутствие магнитных примесей. Такой же пик был обнаружен в коротких одномерных алюминиевых проводниках [4]. Однако авторы этой работы связывают появление резистивного пика с размерным фактором исследуемых образцов.

Результаты рентгенографических исследований наших образцов показали наличие однородной и хорошо окристаллизованной сверхпроводящей фазы нитрида ниобия. Эффект имеет настолько выраженный характер, что позволило связать появление пика сопротивления с характерными размерами кристаллитов нитрида ниобия. Подтверждением этому служат дифрактограммы образцов с концентрациями азота 15 и 25 об.% (рисунок 2) и зависимости их сопротивления от температуры, где видно, что аномальной сверхпроводимости соответствуют узкие пики дифрактограмм, свидетельствующие о высокой однородности и монодисперсности нитридных кластеров.

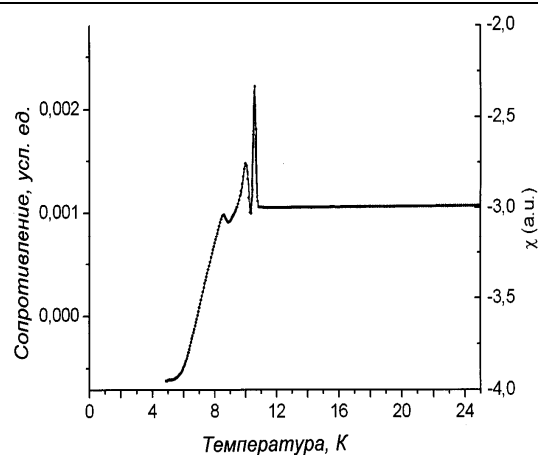


1- при концентрации 25 об. % азота в аргоне; 2 – 20 об. %  
Рисунок 1 – Зависимость сопротивления нитрида ниобия от температуры



\* -  $\delta_1$ -NbN, o - подложка.

Дифрактограмма образца NbN, полученного при концентрации 25 об. % азота в аргоне



Аномальный сверхпроводящий переход с тремя пиками

Рисунок 2 – Дифрактограмма и зависимость сопротивления от температуры образца NbN

Выполненные исследования позволили установить влияние параметров решетки, текстуры и фазового состава на критические характеристики синтезируемого сверхпроводящего покрытия из нитрида ниобия. Наиболее высокой критической температуре соответствует величина параметра решетки 0,4392 нм. Столбчатая структура формируемых покрытий способствует увеличению концентрации центров пиннинга и увеличению критической плотности тока. Присутствие в пленочном покрытии  $\epsilon$ -фазы NbN снижает температуру перехода. Фаза  $\epsilon$ - NbN не образуется при снижении содержания азота в газовой фазе менее 27%.

*Получение и исследование структуры и фазового состава слоистых нитридов титана и ниобия*

Предварительно перед формированием слоистых структур нитридов ниобия и титана отработано получение слоистых структур на металлической системе ниобий-титан. Образцы слоистых структур в системе Nb-Ti получены при последовательном увеличении толщины слоев каждого из металлов, напыляемых поочередно. Для этого использовалось устройство, для попеременного включения одного из магнетронов при прохождении карусельного устройства с подложками через поток низкотемпературной плазмы через произвольное число оборотов. Нами сформированы структуры при постоянной работе распылителей, формировании слоев ниобия и титана поочередно в течение одного, двух, четырех и восьми оборота карусельного устройства. Толщину одного слоя каждого из металлов, суммарную толщину и содержание металлов в слоистой системе формировали примерно одинаковыми (таблица 3).

Таблица 3 – Условия формирования слоистых структур системы ниобий-титан

Количество слоев (оборотов)	Толщина одного слоя Nb	Суммарная толщина Nb, нм	Толщина одного слоя Ti, нм	Суммарная толщина Ti, нм	Концентрация Ti, ат.%	Концентрация Nb, ат.%
0,5×0,5 непрерывно	0,31	207	0,30	198	49,2	50,8
1×1	0,66	217	0,61	201	48,5	51,5
2×2	1,21	200	1,27	209	51,7	51,7
4×4	2,54	208	2,34	192	48,5	51,5
8×8	5,02	206	4,61	189	48,2	51,8

В случае напыления ниобия и титана при совместной работе двух магнетронов (непрерывно) получается твердый раствор титана в ниобии. При поочередном включении каналов распыления титана и ниобия начинают образовываться слоистые структуры. При включении, когда магнетроны работают по одному обороту карусельного устройства получается ГЦК-фаза ниобия с параметром решетки  $a=0,4229$  нм. Титан как отдельная фаза не фиксируется. При напылении с включением магнетронов через два оборота карусельного устройства главный пик ниобия расплывается и возникают первые признаки существования ГПУ-фазы титана. При включении магнетронов через четыре оборота карусельного устройства фаза титана выявляется более отчетливо.

Напыление с включением магнетронов через восемь оборотов карусельного устройства дает двухфазное покрытие, где ниобий представлен г.ц.к.-фазой с параметром решетки  $a=0,4229$  нм, а титан - ГПУ-фазой с параметрами  $a=0,2957$  нм,  $c=0,4688$  нм.

Таким образом, получены слоистые структуры ниобия и титана начинающиеся от твердого раствора титана в ниобии через слои минимальной толщины до четко выраженной двухфазной системы. Полученные данные позволили

гарантировать получение слоистых структур нитридов ниобия и титана и облегчить интерпретацию рентгенографических данных.

На основании полученных результатов синтеза монослоев титана и ниобия, а также слоистых структур ниобия и титана были получены слоистые структуры, состоящие из сверхпроводящего нитрида ниобия  $\delta_1$ -NbN и нитрида титана TiN. Получены слоистые покрытия двух типов: в одном случае, когда сверхпроводящий слой  $\delta_1$ -NbN находится в обкладке из покрытий TiN, и в случае, когда нитрид титана находится в обкладке сверхпроводящего покрытия  $\delta_1$ -NbN. Толщины формируемых слоев контролировались временем осаждения каждого слоя, при попеременной работе противоположных пар магнетронов. Контроль толщины слоев в полученном покрытии производился при помощи метода резерфордского обратного рассеяния. При осаждении покрытий поддерживалась постоянная мощность, 127 Вт на каждом из каналов, и постоянное давление аргон-азотной смеси в рабочей камере  $3 \cdot 10^{-3}$  мм.рт.ст. В результате получены покрытия NbN-TiN-NbN и TiN-NbN-TiN с толщиной слоев нитрида ниобия и титана от 400 до 50 нм.

Криогенные испытания покрытия с толщиной слоя 250 нм осажденного при давлении газа в рабочей камере  $4 \cdot 10^{-3}$  мм.рт.ст., показало переход в сверхпроводящее состояние при 14 К. Последующее уменьшение толщины слоев до 200 и 100 нм также показало наличие перехода в сверхпроводящее состояние при 14 и 13,9К, давление в камере при этом составляло  $5,5 \cdot 10^{-3}$ . В покрытиях NbN-TiN-NbN и TiN-NbN-TiN с толщиной слоев 90 нм сверхпроводящие свойства также сохраняются, и температура перехода в сверхпроводящее состояние составила 14,2 и 13,5К соответственно.

Уменьшение толщины слоев в слоистом покрытии до 50 нм привело к исчезновению перехода в сверхпроводящее состояние в покрытии TiN-NbN-TiN, а в покрытии NbN равной толщины без граничащих слоев TiN сверхпроводящие свойства сохранились. Температура критперехода составила 13,9К.

#### **Заключение**

В результате исследований определены структура и свойства монослоев титана и ниобия в зависимости от условий формирования и определена область стабильного существования фаз нитрида титана и сверхпроводящей фазы нитрида ниобия в зависимости от содержания азота в плазмообразующем газе. Определены критические характеристики синтезированного сверхпроводящего покрытия на основе нитрида ниобия. Температура перехода пленок в сверхпроводящее состояние колебалась в пределах от 14 до 16 К. При исследовании впервые в районе критического перехода обнаружен не нашедший пока объяснения гигантский скачок сопротивления с последующим переходом в сверхпроводящее состояние в образцах нитрида ниобия, полученных при синтезе в плазмообразующем газе с концентрациями 20 и 25 об.% азота на алюминиевой фольге. Далее был произведен синтез сложных нитридов ниобия и титана с использованием эффекта термофлуктуационного плавления металлических фаз, установлены структура и свойства в зависимости от соотношения компонент в покрытии. Синтезированы слоистые покрытия NbN-TiN-NbN и TiN-NbN-TiN. Установлено сохранение сверхпроводящих свойств в слоистой системе при уменьшении толщины слоев до 90 нм.

#### **Список литературы**

1. Тулеушев А.Ж., Тулеушев Ю.Ж., Володин В.Н. Механизм понижения температуры синтеза сверхпроводящих покрытий на основе ниобия // ФММ.-2002.- Т.94, № 5.- С.74-79.
2. Тулеушев А.Ж., Тулеушев Ю.Ж., Володин В.Н. Синтез пленок плумбида ниобия Nb<sub>3</sub>Pb при пониженной температуре // ФММ.- 2002.- Т.94, № 4.- С.77.
- 3 P. Lindqvist, A. Nordstrom, O. Rapp New resistance anomaly in the superconducting fluctuation region of disordered Cu-Zr alloys with dilute magnetic impurities. // Phys. Rev.-1990.- Vol.64, № 24. -P.2941-2944.
- 4 P. Santhanam, S.J.Wind, M.J.Brady, J.J Bucchignano Resistance anomaly near the superconducting transition temperature in short aluminium wires. // Phys. Rev.- 1991.- Vol.66, № 17.- P.2254-2257.

## **РАЗРАБОТКА ГИДРОТЕРМАЛЬНОГО МЕТОДА СИНТЕЗА НАНОПЛЕНОК ДЛЯ СОЗДАНИЯ СОЛНЕЧНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ**

Д.М.Мухамедшина, Н.А.Доля, К.А.Мить, В.Б.Глазман  
*Физико-технический институт, г. Алматы, Казахстан*

#### **Введение**

Направление современных научных исследований, связанное с синтезом и анализом новых наноструктурированных оксидных материалов в последнее время интенсивно развивается благодаря вполне обоснованным ожиданиям того, что данные материалы могут обладать новыми перспективными функциональными характеристиками в силу их уникальной структуры [1-4].

Синтезу оксидных нанокристаллов и нанопленок в гидротермальных условиях, изучению особенностей их строения и свойств, возможности применения посвящается в настоящее время большое число исследований. Широкое применение гидротермального синтеза для получения наночастиц определяется рядом его преимуществ по сравнению с другими методами [5-6].



Сущность гидротермального метода заключается в нагревании солей или гидроксидов металлов в виде раствора при повышенной температуре (обычно до 300 °С) и давлении (около 100 МПа). При этом в растворе происходят химические реакции, приводящие к образованию продукта реакции – простого или сложного оксида. Это относится и к материалам на основе оксида цинка и олова.

Одним из наиболее востребованных и в тоже время недостаточно изученных методов синтеза оксида цинка в гидротермальных условиях является рост наноструктур (нанопленок) на поверхности различных материалов для уменьшения коэффициента отражения падающего на него света, что может быть использовано при создании солнечных элементов, обладающих повышенной эффективностью [7,8].

В представленной работе приводятся результаты исследования влияния параметров гидротермального синтеза на структуру, морфологию и фотолюминесцентные свойства пленок оксида цинка.

#### **Экспериментальная часть**

Для получения наноструктурированных пленок диоксида олова, оксида цинка или сульфида цинка, сконструирован и изготовлен автоклав из нержавеющей стали.

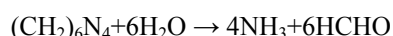


Рис. 1. Автоклав и его детали

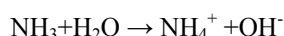
На морфологию и свойства оксидных пленок, получаемых гидротермальным методом, влияет большое число параметров, которые можно разделить на две группы:

- параметры, связанные с составом смеси (рН, концентрация и соотношение реагентов, присутствие осаждающих веществ, ПАВ и т.д.) и
- параметры, связанные с режимом гидротермальной обработки (температура синтеза, длительность выдержки, скорость и равномерность нагрева и охлаждения).

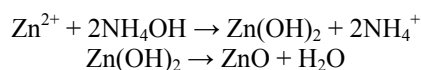
Химические процессы, лежащие в основе данного метода, выглядят следующим образом: уротропин (гексаметилентетрамин) под действием температуры и воды разлагается на аммиак и формальдегид [8-9]:



Аммиак, растворяясь в воде, образует сильное основание – гидроксид аммония:



Гидроксид аммония осаждает ионы цинка в виде нерастворимого гидроксида цинка, который под действием температуры разлагается на оксид цинка и воду:



Одним из самых важных факторов получения наноструктур является наличие и качество затравочного слоя. Обеспечение воспроизводимого слоя затравок необходимо для получения воспроизводимых нанопленок, так как размер образованных зародышей в конечном счете определит размер конечных кристаллов [9]. Это и гарантирует восстанавливаемый оксид цинка с размерами и архитектурой, подходящими для фотогальванических устройств.

На рисунке 2 представлены основные параметры гидротермального синтеза, от которых зависит морфология выращиваемых наноструктур.

Исследование морфологии поверхности синтезированных пленок оксида цинка проводилось на атомно-силовом микроскопе JSPM-5200, JEOL (Япония) полуконтактным и контактными методами и на растровом электронном микроскопе JSM 6490 LA фирмы Jeol (Япония) с энергодисперсионной приставкой. Спектры люминесценции измерялись при комнатной температуре на установке СДЛ-2 (ЛОМО, Россия). Источником излучения служил гелий-кадмиевый (HeCd) лазер с длиной волны 325 нм. Структуру синтезированных пленок анализировали на программно-измерительном комплексе «Дрон-6» для рентгеноструктурных исследований в режиме  $\theta$ - $2\theta$  с последующей расшифровкой, используя базу данных ASTM.

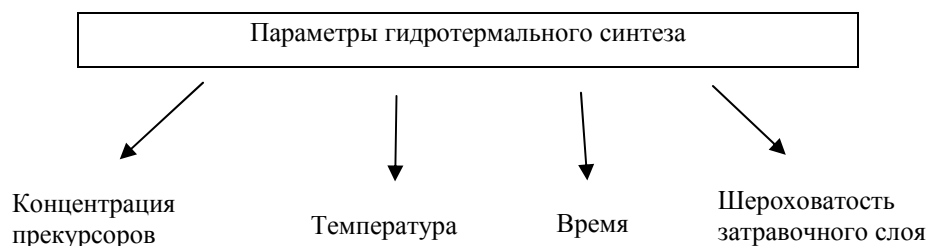


Рис. 2. Параметры гидротермального синтеза

### Результаты и обсуждение

#### Характеристики затравочного слоя

На установке УИЛИС для ионно-лучевого осаждения в атмосфере аргона Ag были осаждены пленки Zn на стекле при следующих параметрах осаждения:  $I=35\text{ mA}$ ,  $U=2,5\text{ kV}$ . Время осаждения 2 мин. Пленки были отожжены на воздухе при температуре  $400^\circ\text{C}$  в течении 1 часа. При отжиге из частиц Zn, осевших на подложку, формировались кристаллы оксида цинка, являющимися при гидротермальном синтезе центрами кристаллизации наночастиц.

На атомно-силовом микроскопе в полуконтактном AC-AFM и контактном AC Contact режимах с использованием кантилеверов фирмы Micromash CSC 37 Al BS, NSC 35 Al BS были получены снимки поверхности затравочных слоев. Измерения показали, что шероховатость поверхности затравочного слоя  $1,5 \times 1,5\text{ мкм}$  пленки ZnO (осаждение в течение 2-х минут и отжиг при  $400^\circ\text{C}$  в течение 1 часа) составляет 1,90 и 2,32 нм для контактного AFM-Contact и полуконтактного AFM-AC способов измерения, соответственно. Изображения поверхности пленки ZnO приведены на рисунках 3(а,б).

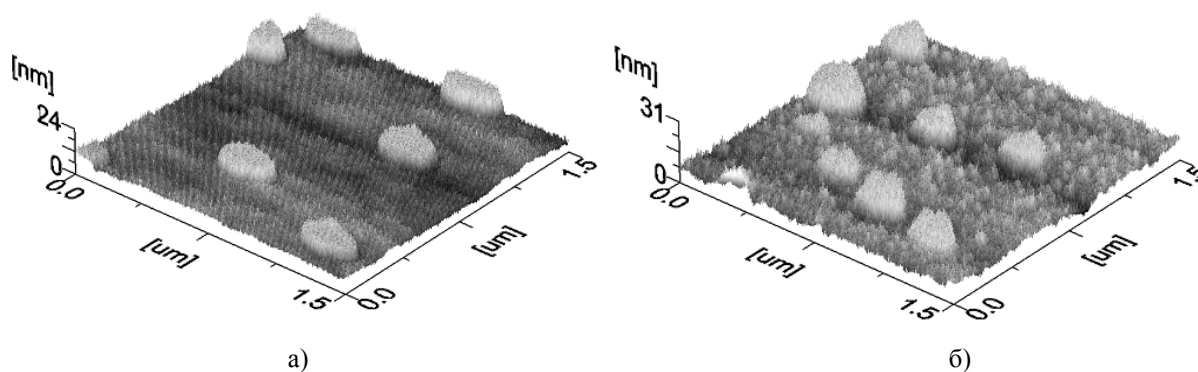


Рис.3(а,б) - Изображение  $1,5 \times 1,5\text{ мкм}$  поверхности затравочного слоя ZnO на стекле, полученное контактными (а) и полуконтактными способами. Время осаждения 2 мин. Последующий отжиг при  $400^\circ\text{C}$  1 час на воздухе

В таблице 1 приведены параметры шероховатости, определенные с использованием программного обеспечения, где  $R_a$  – средняя шероховатость;  $R_{zjis}$  – средняя шероховатость по 10 точкам;  $S$  – площадь изображения;  $R_q$  – среднеквадратичная шероховатость;  $R_z$  – разность между максимумом и минимумом высоты анализируемого изображения;  $S_{ratio}$  – отношение площади изображения  $S$  (net surface area) к площади плоской поверхности  $S_0$  (flat surface).

Таблица 1. Параметры поверхности затравочного слоя при 2-х минутном осаждении Zn и отжиге  $400^\circ\text{C}$  на воздухе

Способ измерения	Размер изображения, мк	$R_a$ , нм	$R_q$ , нм	$R_{zjis}$ , нм	$R_z$ , нм	$S$ , мк <sup>2</sup>	$S_{ratio}$
AFM-contact	$1,5 \times 1,5$	1,90	2,71	21,6	24,0	3,06	1,36
AFM-AC	$1,5 \times 1,5$	2,32	3,50	28,2	30,6	3,02	1,34

Так как полуконтактный способ измерения более подробно прорисовывает тонкую структуру рельефа поверхности и, соответственно, значения шероховатости больше.

На рисунке 4 приведено распределение частиц по размерам на затравочном слое с участка  $500 \times 500\text{ нм}$ , изображение которого снято на атомно-силовом микроскопе. Наибольшее количество частиц наблюдается с размерами 30-45 нм.

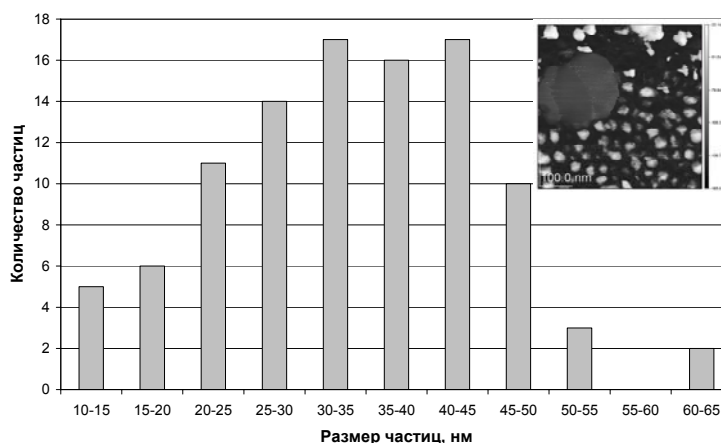
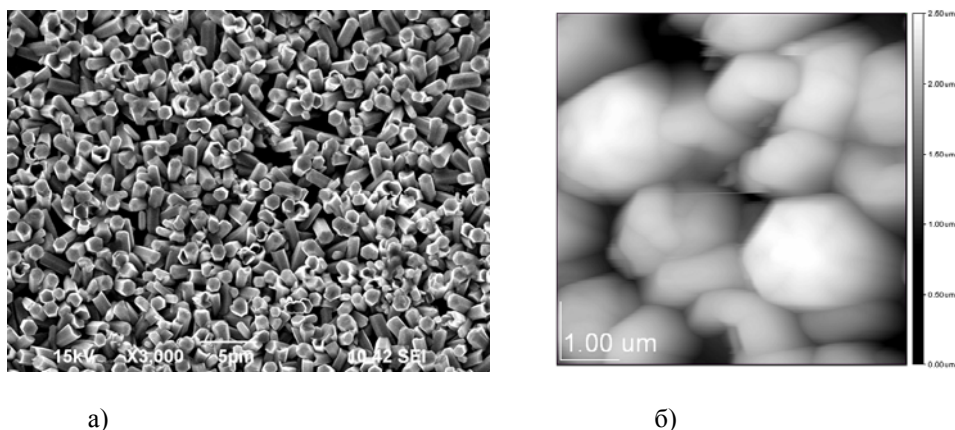


Рис.4. Распределение частиц по размерам на затравочном слое по данным АСМ (500x500 нм)

Видно, что полуконтактный способ измерения более подробно прорисовывает тонкую структуру рельефа поверхности и, соответственно, значения шероховатости больше.

Гидротермальный синтез пленок оксида цинка проводился в автоклаве при температуре 120°C в течение 3 часов. Стекланную подложку, с затравочным слоем, помещали в водный раствор нитрата цинка и уротропина, взятых в эквимолярных количествах (0,2 моль/л).

Для оценки структурного качества слоев проведены исследования морфологии поверхности пленок и рентгеновские измерения. На рисунке 5 (а,б) представлены снимки с электронного и атомно-силового микроскопов. Как видно, большая часть сформированных микрокристаллов состоят из шестигранных стержней. Проведенный анализ угла отклонения стержней от подложки выявил, что значительная часть стержней растет под углом 45-90° к поверхности подложки.



а)

б)

Рис.5 (а,б). Изображения с электронного (а) и атомно-силового микроскопов пленки ZnO, осажденной из водного раствора нитрата цинка и уротропина с эквимолярной концентрацией 0,2 моль/л.

На рисунке 6 представлена рентгенограмма пленок ZnO после синтеза. На рентгенограмме обнаружено 7 линий, характерных для ZnO, что свидетельствует о наличии лишь поликристаллической фазы.

Оценки по формуле Шерера дают для размера кристаллитов образца ZnO значение порядка 95 нм для рефлекса (100), около 150 нм для рефлекса (002), 100 нм для (101) и около 50 нм для рефлексов (102); (110); (103).

На рентгенограммах пленок, снятых после отжига при температурах 150- 450°C с шагом 25°C в течение 1 час рефлексы остаются теми же, но изменяется соотношение интенсивностей рефлексов 100, 002 и 100, размеры кристаллов вдоль направления [002] остаются большими и соответствующий рефлекс отражения остается доминирующим.

Оптические свойства пленок ZnO были исследованы при комнатной температуре, используя фотолюминесценцию с возбуждением линии 325 нм He-Cd лазера. Как видно из рисунка 7, после синтеза наблюдается достаточно широкая ультрафиолетовая линия эмиссии при 381 нм (3,29 эВ), связанная с экситонной рекомбинацией, которая сужается и увеличивает свою интенсивность после отжига 250°C в течение часа и имеет тенденцию к уменьшению после более длительного отжига.

Широкая и слабая эмиссия, появляющаяся после отжига 250°C, сосредоточена в диапазоне 500-700 нм, которую, в большинстве случаев, приписывают глубоким уровням дефектов, как кислородные вакансии и междоузельные атомы цинка [8-9]. Узкая ультрафиолетовая эмиссия и слабая видимая эмиссия свидетельствует о низкой концентрации дефектов в наших образцах, изготовленных гидротермальным методом при достаточно низкой температуре 120°C.

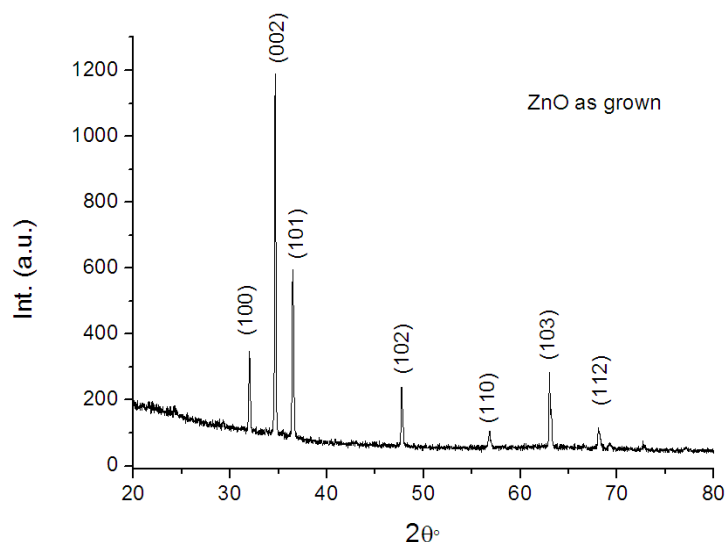


Рис.6. Рентгенограмма образца ZnO, полученного при осаждении на стеклянную подложку из водного раствора с эквимолярной концентрацией нитрата цинка и уротропина 0,2 моль/л.

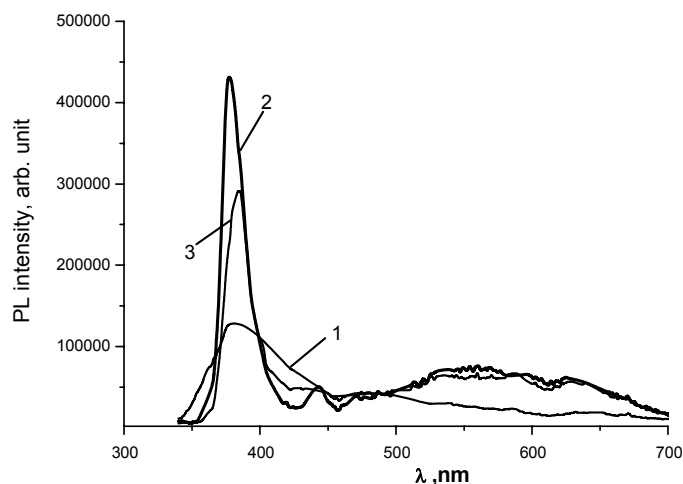


Рис. 7. Спектры фотолюминесценции пленок ZnO, измеренные после синтеза (кривая 1); после отжига при температуре 250°C в течение 1 часа (кривая 2) и 8 часов (кривая 3). Измерения проведены на воздухе при комнатной температуре

#### Выводы

Разработан гидротермальный метод осаждения тонких пленок оксида цинка. В ходе экспериментов отработаны режимы синтеза, позволяющие получать наноструктурированные пленки ZnO с воспроизводимой морфологией. Исследованы морфология, структурные и фотолюминесцентные характеристики синтезированных пленок оксида цинка в зависимости от технологических режимов получения.

#### Список литературы

1. Sunandan Baruah and Joydeep Dutta. Hedrothermal growth of ZnO nanostructures. *Sci.Technol.Adv.Mater.*10 (2009)013001 (18 pp).
2. Aron R. Rachamim, Sharvari H.Dalal, Sieglinde M.-L. Pfaendler, Michael E. Swanwick, Andrew J.Flewitt and William I. Milne. Quantitative Investigation of the Factors Affecting the Hydrothermal Growth of Zinc Oxide Nanowires. *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.*Vol.1174 2009 Material Research Society.
1. Лебедев В.А., Чурагулов Б.Р. Гидротермальный синтез оксида цинка с использованием различных подложек. *Перспективные материалы. Спец. Вып. (6), 2, декабрь 2008, с. 30-34.*
2. Hu XL, Masuda Y, Olji T, Kato K. Fabrication of Blanket-Like Assembled ZnO Nanowhiskers Using an Aqueous Solution. *Journal of the American Ceramic Society, Vol.92, No.4, 922-926, 2009.*
4. Seung Hwan Ko, Daeho Lee, Hyun Wook Kang, Koo Hyun Nam, Joon Yeob Yeo, Suk Joon Hong, Costas P. Grigoropoulos, and Hyung Jin Sung Nanoforest of Hydrothermally Grown Hierarchical ZnO Nanowires for a High Efficiency Dye-Sensitized Solar Cell.– *Nano Lett., Article ASAP; DOI: 10.1021/nl1037962; Publication Date (Web): January 5, 2011.*
5. 6.. Thin film solar cells: fabrication, characterization, and application// edited by Jef Poortmans and Vladimir Archipov, - John Wiley and Sons Inc., -2007. 504 p.

6. Sun-Hong Park, Seon-Hyo Kim and Sang-Wook Han. Growth of homoepitaxial ZnO film on ZnO nanorods and light emitting diode applications. *Nanotechnology* 18 (2007) 055608 (6pp).
7. M. Law, L.E. Greene, J.C. Johnson, R. Saykally, and P. Yang, Nanowire dye - sensitized solar cells," *Nat Mater*, vol. 4, Jun. 2005, pp. 455-459.
8. James S. Bendall and Swee Ching Tan (2011). Investigating the Hydrothermal Growth of Zinc Oxide Nanostructures Through Seed Layer Control. *Zeitschrift für Physikalische Chemie*: 2011.Vol. 225, No. 3, pp. 341-350.
9. Michael N.R. Ashfold, Rachel P. Doherty, N. George Ndifor-Angwafor, D. Jason Riley and Ye Su. The kinetics of the hydrothermal growth of ZnO nanostructures. *Thin Solid Films* Vol.515, Issue 24, 2007, P. 8679-8683.

## РАЗРАБОТКА МЕТОДА КОНТРОЛЯ ГЕРМЕТИЧНОСТИ ЗАКРЫТЫХ ИСТОЧНИКОВ НА ОСНОВЕ РАДИОНУКЛИДОВ $^{57}\text{Co}$ И $^{60}\text{Co}$

Егамедиев С.Х., Нурбаева Д.А., Саидова З.А., Таштемирова Н.Ж.  
*Институт Ядерной Физики АН РУз, Ташкент, Республика Узбекистан*

Важнейшим критерием работоспособности, из которых исходят при создании и эксплуатации источников с точки зрения их оптимального использования и охраны окружающей среды, являются герметичность закрытого источника и значение контролируемого радиационного параметра, которые должны сохраняться в допустимых пределах в течение всего установленного срока службы. Нарушение герметичности принимается в качестве основного критерия отказа при оценке результатов испытаний источников или их имитаторов, так как негерметичное состояние источника связано с возникновением радиационной опасности и возможности радиоактивного загрязнения окружающей среды, т.е. в этом случае радионуклидный источник не соответствует определению закрытого.

Важным аспектом для всех видов испытаний закрытых источников при оценке их результатов является достоверный контроль герметичности. Для проверки герметичности источников в настоящее время используют вакуумно-пузырьковый жидкостной метод, метод течеискателя, метод снятия мазка и метод погружения (экстракции) [1].

Вакуумно-пузырьковый жидкостной метод, основан на визуальном наблюдении пузырьков воздуха от негерметичного источника, который помещается на время испытания в соответствующую жидкость. Для усиления эффекта выделения пузырьков используются вакуумные камеры. В качестве жидкости применима вода, этиленгликоль, глицерин. Однако основным недостатком этого метода является его малая чувствительность, особенно в случае контроля малогабаритных источников.

Метод течеискателя заключается в том, что источник помещается в камеру давления, в которую вместо воздуха нагнетается гелий или другой подходящий газ и давление его поднимается до 1-2 МПа, затем выдерживается в атмосфере гелия в течение 30 мин и после снятия давления перемещается в вакуумную камеру. Если измеряемое натекание гелия имеет значение меньше заданной величины, источник считается герметичным. Однако этот метод является несколько неудобным и требует применение сложного оборудования и дорогостоящего инертного газа гелия.

Поэтому наиболее технологичным следует считать радиометрические методы снятия мазка и погружения. Метод снятия мазка с поверхности источника является простейшим и состоит в тщательном трехкратном обтирании внешней поверхности источника тампоном из фильтровальной бумаги, марли или ваты с усилием 20-50 кПа. Для приготовления влажного тампона должен использоваться соответствующий растворитель, который не разрушает материал оболочки источника и в то же время обеспечивает эффективное снятие поверхностной активности данного радионуклида. Измеряемая на радиометрической установке полная активность для герметичного источника не должна превышать 185 Бк.

Метод погружения при испытании источников на герметичность состоит в том что источник погружают в воду, кислотный или другой экстракционный раствор, не оказывающий вредного воздействия на материал оболочки закрытого источника и способный в условиях данного испытания эффективно выщелачивать соответствующий радионуклид. Температура и длительность выдержки обычно регламентируется. Затем источник извлекается, измеряется полная активность радионуклидов в растворе и, если она не превышает допустимого предела, можно считать, что поверхностное радиоактивное загрязнение отсутствует и источник герметичен. Основной недостаток данного метода заключается в том, что он требует больших затрат времени, особенно при технологическом и производственном контроле источников.

Поэтому нами предлагается усовершенствованный метод контроля герметичности источников на основе радионуклида  $^{57}\text{Co}$  с использованием метода предварительного концентрирования и выделения активности радионуклида, перешедшей в раствор с использованием предварительной динамической адсорбции на селективном сорбенте по отношению к кобальту.

Целью настоящего исследования является разработка метода контроля герметичности закрытых источников на основе радионуклида кобальт-57. Сущность метода заключается в предварительной адсорбции на модифицированном оксиде алюминия и определении активности радионуклида  $^{57}\text{Co}$ , перешедшей в раствор кислотной вытяжки при испытании на герметичность источника.

**Реагенты и материалы.** В качестве сорбента использовали образец оксида алюминия «для хроматографии», предварительно промытого раствором 3 М соляной кислоты и прокаленного при 1000 °С. В качестве модификатора использовали 1-Нитрозо-2-нафтол-3,6-дисульфокислота (нитрозо-R-соль), который широко используется для определения кобальта в объектах окружающей среды [2]. Был приготовлен 0,026 М раствор нитрозо-R-соли в дистиллированной воде.

Радиоактивные индикаторы  $^{65}\text{Cu}$ ,  $^{59}\text{Fe}$  и  $^{65}\text{Zn}$  были получены путём облучения нейтронами соответствующих металлов и оксидов металлов марки «осч» в реакторе ВВР-СМ ИЯФ АН РУз. В качестве радиоактивного индикатора кобальта был использован радионуклид  $^{57}\text{Co}$  без носителя.

Растворы ионов металлов были приготовлены разбавлением стандартных растворов по требованию. Для приготовления растворов металлов была использована бидистиллированная вода. Все остальные реактивы были «чда». Все стеклянные изделия и бутылки из полиэтилентерефталата были тщательно очищены замачиванием в растворе 10 М азотной кислоты и затем полосканием в бидистиллированной воде.

**Методика.** Сорбцию изучали в статических и динамических условиях методом радиоактивных индикаторов. Порция оксида алюминия 1 г контактировалась 5 мл 0,1 М HCl, затем оксид алюминия промывался водой до pH=3-4, после этого оксид алюминия контактировался с раствором нитрозо-R-соли при pH 5-6 в течение ночи. Объём раствора нитрозо-R-соли варьировался от 5 до 30 мл. Затем сорбент промывался дистиллированной водой для удаления избытка нитрозо-R-соли и контактировался раствором требуемым значением pH. После установления равновесия модифицированный оксид алюминия использовался в опытах. Соотношение объёма водной фазы и сорбента составляла 10. Динамическую адсорбцию радионуклида  $^{57}\text{Co}$  и других элементов изучали на стеклянных колонках с внутренним диаметром 6 мм при скорости потока 0,5-0,6 мл.

**Приборы.** Радиометрические измерения проводили при помощи четырехканального анализатора NP 424 В (Венгрия). Измерения активности радионуклидов и их идентификацию проводили на спектрометрической установке, включающей в себя блок детектирования гамма-излучения типа ДГДК 100 А на основе Ge(Li) детектора и многоканального анализатора NTA 1024.

**Полученные результаты.** Предварительными экспериментами по адсорбции нитрозо-R-соли на оксиде алюминия было установлено, что максимальная емкость оксида алюминия по отношению к нитрозо-R-соли составляет 0,65 ммоль на 1 г  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Изучение стабильности модифицированного оксида алюминия показывает, что при промывке сорбента растворами 0,1 М  $\text{HNO}_3$  и 0,1 М HCl десорбируется не значительное количество модификатора. Напротив, при промывке модифицированного сорбента раствором 0,5 М NaOH нитрозо-R-соль практически полностью десорбируется с поверхности оксида алюминия.

Изучение адсорбции  $^{57}\text{Co}$  на модифицированном оксиде алюминия, содержащего различные количества нитрозо-R-соли показывает, что радионуклид  $^{57}\text{Co}$  без носителя количественно адсорбируется при pH=6 на сорбенте при содержании нитрозо-R-соли от 0,52 до 0,65 ммоль на 1 г  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Полученные данные приведены в таблице 1. Как видно из таблицы, коэффициент распределения  $^{57}\text{Co}$  без носителя возрастает с увеличением содержания модификатора на оксиде алюминия и при содержании 0,65 ммоль/1г  $\text{Al}_2\text{O}_3$  достигает 1345. Степень адсорбции  $^{57}\text{Co}$  составляет 99,3%. Изучение поведения  $^{57}\text{Co}$  методом десорбции раствором 0,1 М HCl показывает, что радионуклид кобальт-57 количественно удерживается на всех изученных образцах модифицированного оксида алюминия и коэффициент распределения  $^{57}\text{Co}$  в этих условиях составляет больше  $10^3$ . Радионуклид  $^{57}\text{Co}$  практически не сорбируется на чистом оксиде алюминия при pH=6 и промывке  $\text{Al}_2\text{O}_3$  0,1 М HCl легко вымывается, коэффициент распределения  $^{57}\text{Co}$  составляет 0,1. Такое поведение радионуклида  $^{57}\text{Co}$  можно объяснить комплексообразующей способностью нитрозо-R-соли по отношению катионам кобальта.

Известно [3], что при взаимодействии ионов двухвалентного кобальта с нитрозо-R-солью образуется соединение, в котором кобальт трёхвалентен и содержит три молекулы реагента. Следует также отметить, что хотя комплекс не образуется в кислой среде, тем не менее он не разрушается минеральными кислотами, в отличие от комплексов других тяжелых металлов.

Таблица 1 Влияние количества модификатора нитрозо-R-соли на адсорбцию  $^{57}\text{Co}$  без носителя на оксиде алюминия

[NRS], ммоль/г	0	0,13	0,26	0,39	0,52	0,65	0,78
D, мл/г	1,2	8,4	28	65	131	1345	1300
Степень адсорбции, %	10,7	46	74	86	92,9	99,3	99,2
Десорбция 0,1 М HCl, D, мл/г	0,1	$>10^3$	$>10^3$	$>10^3$	$>10^3$	$>10^3$	$>10^3$

Результаты по изучению влияния pH водной фазы на адсорбцию  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Cu}^{2+}$  и  $\text{Fe}^{3+}$  на модифицированном оксиде алюминия представлены в таблице 2. Как видно из таблицы 2, цинк не сорбируется из кислой среды на модифицированном сорбенте, незначительная его сорбция наблюдается только при pH=8-10. Количественная адсорбция  $\text{Co}^{2+}$  на модифицированном сорбенте наблюдается уже при pH=2-4 и коэффициент распределения составляет 92-96. Установлено, что оптимальным значением pH водной фазы для сорбции кобальта является pH=6, где коэффициент распределения кобальта составляет 1300. При увеличении pH до 10 коэффициент распределения кобальта уменьшается, что, по-видимому, связано с вымыванием нитрозо-R-соли из фазы модифицированного сорбента. Медь и железо также адсорбируются на модифицированном оксиде алюминия на всем протяжении исследованного диапазона pH=2-10. Было установлено, что при сорбции из растворов pH=8-10 коэффициенты



распределения меди в отличие от кобальта выше, что можно объяснить количеством нитрозо-R-соли в фазе оксида алюминия, которая недостаточно для образования комплекса Co(III)-нитрозо-R-соль 1:3, но достаточна для образования комплекса с медью Cu(II)-нитрозо-R-соль 1:2 [3]. При промывке сорбентов растворами гидроксида натрия было установлено, что кобальт и железо количественно десорбируются в виде комплексов с нитрозо-R-солью 0,5 М NaOH. Медь в этих условиях удерживается на сорбенте и может быть элюирована 0,5 М растворами HNO<sub>3</sub>. Также была изучена адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co из растворов различных электролитов (NaCl; NaNO<sub>3</sub>). Установлено, <sup>57</sup>Co без носителя количественно сорбируется из растворов электролитов и степень адсорбции составляет 99% при концентрации 2 г/л.

Таблица 2 Влияние pH раствора на сорбцию Co, Zn, Cu и Fe на оксиде алюминия, модифицированного нитрозо-R-солью

pH	Элемент			
	Zn	Co	Cu	Fe
	Коэффициент распределения D, мл/г			
2	0,9	92	58	28
4	1,1	96	69	22
6	1,1	1300	620	28
8	10,6	24	420	23
10	14	20	285	18

Динамическая ёмкость модифицированного оксида алюминия до проскока при pH 6 и скорости потока 0,6 мл/мин составила 2,5 мг кобальта соответственно. Также была изучена динамическая адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co без носителя из 1 л дистиллированной воды и показано, что адсорбция радионуклида <sup>57</sup>Co составляет 97,6%.

На основании полученных результатов разработана методика проверки герметичности закрытых источников на основе радионуклида кобальт-57. Экспериментальный образец закрытого источника <sup>57</sup>Co помещался в стакан с раствором 0,01 М HNO<sub>3</sub> объёмом 15 мл, предварительно нагретого до (60-90) °С. Затем стакан закрывали часовым стеклом, помещали на магнитную мешалку и выдерживался в течение 15 минут в указанном растворе при постоянном нагревании (температура 70 °С). Затем раствор кислоты сливали из стакана и источник промывали 3-4 порциями по 50 мл дистиллированной воды и промывные воды смешивали с раствором кислоты. Затем весь полученный раствор пропускали через хроматографическую колонку, содержащую 0,6 г оксида алюминия, модифицированного нитрозо-R-солью со скоростью 0,5 мл/мин. После адсорбции <sup>57</sup>Co на колонке стакан дополнительно промывался 50 мл дистиллированной воды и промывные воды также пропускали через колонку. Затем колонка промывалась 5 мл раствора 0,5 М NaOH для элюирования <sup>57</sup>Co и определялась активность <sup>57</sup>Co. Источник считается герметичным, если активность <sup>57</sup>Co перешедшая в раствор выщелачивания не превышает значения 185 Бк. Источник должен сохранять параметры после воздействия факторов, определяемых следующими степенями жесткости по МС ИСО 2919: Температура –5 (от -50 до 600 °С); Давление – 4 (от 0,025 до 7 МПа); Удар с высоты 1 м – 4 (2 кг); Вибрация –1 (без испытания); Прокол с высоты 1 м (без испытания). Класс прочности и классификационное обозначение по ИСО 2919 соответствовать С 54411. Назначенный срок службы источника будет составлять 3 года. Вероятность безотказной работы источника в течение назначенного срока службы должна быть не менее 0.99 при доверительной вероятности 0.9. Критерием отказа является нарушение герметичности источника.

#### Литература

1. Сыгин В. П., Теплов Ф.П., Череватенко Г. А. Радиоактивные источники ионизирующих излучений. М.: Энергоатомиздат, 1984. –127 с.
2. Дмитриев М.Т., Казнина Н.И., Пинигина И.А. Санитарно-химический анализ загрязняющих веществ в окружающей среде. –М.: Химия, 1989. –368 с.
3. Пятницкий И. В. Аналитическая химия кобальта. М.: Наука, 1965.-260 с.

### РАССЕЯНИЕ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН НА ТРЕКАХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ В ВЕЩЕСТВЕ

А.Н. Алмалиев<sup>1</sup>, И.С. Баткин<sup>2</sup>, М.А. Долгополов<sup>1</sup>, И.В. Копытин<sup>1</sup>, П.В. Лукин<sup>1</sup>, Т.А. Чуракова<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Воронежский госуниверситет, г. Воронеж, Россия

<sup>2</sup> Оттава университет, Оттава, Канада

Одной из нерешенных до конца проблем в протонной терапии является коллимация пучка и энерговыделение в заданной области пространства. Существующие способы не всегда позволяют достичь желаемого результата (основная доза излучения в несколько зиверт должна быть получена объектом с размерами в несколько миллиметров). Работа посвящена исследованию взаимодействия ультразвука с неоднородностями, образуемыми движущимся в среде пучком протонов, с целью получения информации о координате пика Брэгга, чтобы удостовериться в достижении цели пучком и более точно откалибровать следующие импульсы.

Предлагается способ определения траектории пучка заряженных частиц, движущихся в конденсированной среде, путем сканирования акустическими волнами высокой частоты тканей, в которых движутся частицы, то есть



облучение среды ультразвуком с последующим детектированием отраженного сигнала. Заряженные частицы при торможении в среде на короткое время меняют ее плотность в окрестности траектории пучка, а, следовательно, и скорость звука. Как следствие, на треке пучка образуется среда с другими параметрами относительно окружающей среды. В итоге звук так же, как и свет, встречая на своем пути границу раздела сред с различными характеристиками (или объект с размерами, значительно превышающими длину падающей акустической волны, и с внутренней структурой, отличной от окружающей среды), может либо отразиться от границы, либо преломиться, входя в новую среду.

При исследовании взаимодействия звука с границей раздела сред в качестве основной расчетной характеристики используется акустический импеданс [1]

$$Z = \rho_0 c = \sqrt{\rho_0 c_{elas}}, \quad (1)$$

где  $\rho_0$  – плотность невозмущенной среды,  $c$  – скорость звука в среде,  $c_{elas}$  – коэффициент упругости ткани. Зная импеданс среды, в которой распространяется волна (первая среда –  $Z_1$ ), и среды, на границу раздела с которой она падает (вторая среда –  $Z_2$ ), вычисляют коэффициент отражения:

$$R = \frac{(Z_2/\cos\theta_t) - (Z_1/\cos\theta_i)}{(Z_2/\cos\theta_t) + (Z_1/\cos\theta_i)}. \quad (2)$$

Здесь  $R$  – отношение амплитуд звуковых давлений падающей и отраженной волн,  $\theta_i$  – угол падения,  $\theta_t$  – угол преломления. Для них выполняется закон Снелла:

$$\frac{\sin\theta_i}{\sin\theta_t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} = \frac{c_1}{c_2}, \quad (3)$$

где  $c_1, c_2$  – скорости звука в первой и второй среде соответственно,  $\lambda_1, \lambda_2$  – длины волн. Кроме того, по аналогии с электромагнитными, для акустических волн также существует критический угол «полного внутреннего отражения» при условии, что  $c_2 > c_1$ :

$$\theta_c = \arcsin(c_1/c_2). \quad (4)$$

Наиболее эффективным является сравнение соотношения сигнал/шум для нужного сигнала, полученного при непрерывном звуковом облучении участка ткани во время прохождения пучка протонов, и сигнала от образца, когда облучение объекта протонами отсутствует. В первом случае в определенных местах будут возникать дополнительные пики, по положению которых может быть рассчитана траектория движения пучка.

Сам пучок частиц тоже будет отражать звуковой сигнал. В этом случае имеет место отражение от движущегося объекта, и за счет эффекта Доплера детектор зафиксирует отраженную волну со сдвигом по частоте. В результате ультразвук, рассеянный пучком, на общем фоне зарегистрированного сигнала несущей частоты может быть выделен.

Измерение вектора скорости рассеивателя на основе фазовых флуктуаций, обычно называемое «измерением по доплеровскому сдвигу», заключается в оценке изменения фазы сигнала, отраженного от движущейся мишени, относительно фазы излученного сигнала [1]. На рисунке 1 показан случай одного рассеивателя, движущегося со скоростью  $V$ . Источник сигнала генерирует звук частоты  $f_r$  в направлении, составляющем угол  $\theta_r$  с треком частицы, приемник регистрирует сигнал частоты  $f_t$ , отраженный от движущегося рассеивателя под углом  $\theta_t$ . Скорость распространения излучения –  $c$ .

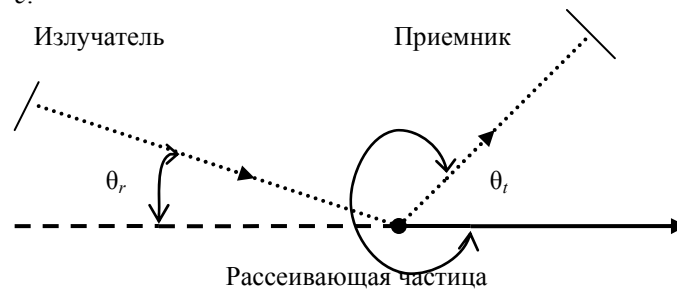


Рис. 1. Схема относительного расположения датчиков ультразвука и движущейся мишени.

Рассматривая отражатель в системе наблюдателя, движущегося относительно источника-излучателя, а затем в системе источника, движущегося относительно наблюдателя-приемника можно получить частоту принятого сигнала в виде

$$f_t = \frac{c - V \cos\theta_r}{c - V \cos\theta_t} f_r. \quad (5)$$

Если учесть, что средняя скорость протона энергии 200 МэВ на 5 порядков выше скорости звука в воде, и при этом не рассматривать углы, близкие к  $90^\circ$ , тогда, используя разложение знаменателя формулы (5) по малому параметру  $\frac{c}{V \cos\theta_t}$  и опуская слагаемые высокого порядка малости, запишем приближенное значение измененной

частоты:

$$f_i \approx f_r \frac{\cos \theta_r}{\cos \theta_i} \left( 1 - \frac{c}{V \cos \theta_r} \right) \left( 1 + \frac{c}{V \cos \theta_i} \right) \approx f_r \frac{\cos \theta_r}{\cos \theta_i} \left[ 1 - \frac{c}{V} \left( \frac{1}{\cos \theta_r} + \frac{1}{\cos \theta_i} \right) \right]. \quad (6)$$

Более простое выражение получается после отбрасывания линейных по  $c/V$  слагаемых:

$$f_i \approx f_r \frac{\cos \theta_r}{\cos \theta_i}. \quad (7)$$

Таким образом, зная частоты излученного и принятого сигналов, а также угол между направлениями их распространения, рассчитывается направление движения частицы относительно ориентации ультразвуковых датчиков.

В более реалистичном случае сигнал будет рассеиваться на большом количестве частиц, движущихся в одном направлении, но с различными скоростями, и распределенных по узкой области пространства. В такой ситуации вместо монохроматической волны со смещенной частотой эхо-сигнал будет содержать целый спектр частот, к тому же уширенный вследствие множества сопутствующих процессов. Но даже в этом случае спектр полученного сигнала должен иметь гауссову форму и частоту, на которой расположен пик, следует рассматривать в качестве величины  $f_i$  в уравнении (7).

#### Список литературы

1. Применение ультразвука в медицине: Физические основы. Пер. с англ. / Э. Миллер, К. Хилл, Дж. Бэмбер и др. – М.: Мир, 1989. – 568 с.

## СВЕРХСТРУКТУРЫ В СПЛАВАХ ТАНТАЛ-АЛЮМИНИЙ

Володин В.Н., Тулеушев Ю.Ж.  
ИЯФ НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Ионно-плазменное распыление материалов, являющееся одним из способов получения потоков ультрадисперсных частиц, позволяет получать твердые растворы высокой концентрации одного металла в другом с многократным увеличением пределов растворимости, разрешенных равновесными диаграммами состояния, при низких температурах. Понижение температуры плавления вследствие размерного фактора открывает возможности создания новых технологий получения и изменения свойств сплавов, особенно из металлов, имеющих высокую температуру плавления (на основе тантала, вольфрама), и материалов из них.

Понижение температуры плавления металлов и расширение границ областей растворимости вследствие влияния размерного фактора особенно привлекательны применительно к сплавам, имеющим в своем составе тугоплавкие металлы, такие как тантал и вольфрам, и легкоплавкие металлы с низкой температурой кипения, например, алюминий.

В результате исследований установлено, что размерной границей образования твердых растворов высокой концентрации являются следующие критические размеры, в качестве которых выбрана толщина островкового покрытия: 0,81 нм для бета-тантала и 1,11 нм для алюминия для системы тантал-алюминий.

#### ОПРЕДЕЛЕНИЕ УСЛОВИЙ ОБРАЗОВАНИЯ СВЕРХСТРУКТУР В СИСТЕМЕ ТАНТАЛ-АЛЮМИНИЙ, СФОРМИРОВАННОЙ НАНОЧАСТИЦАМИ

Система тантал алюминий, полученная традиционным способом – плавлением компонентов при высокой температуре, характеризуется наличием двух соединений в твердой фазе:  $TaAl_3$  и  $Ta_2Al$ . Соединение  $TaAl_3$  имеет решетку изоморфную  $TiAl_3$  ( $a=0,5432$  нм,  $c=0,8530$  нм),  $Ta_2Al$  – тетрагональную типа  $\beta$ -U ( $a=0,9971$  нм,  $c=0,5127$  нм) [1].

При ионно-плазменном формировании сплавов образование твердых растворов объясняется теорией термофлуктуационного плавления. При слиянии разноименных металлов, находящихся в жидком состоянии в малые капли, размер которых менее критического, будет происходить образование жидкого раствора. Достижение критического размера приведет к его кристаллизации. Но в связи с тем, что растворимость металлов в жидкой фазе часто не ограничена, будет кристаллизоваться твердый раствор высокой концентрации, значительно пересыщенный относительно приведенных на равновесных фазовых диаграммах, полученных плавлением компонентов. При этом непременным условием образования раствора высокой концентрации является присутствие обоих металлов в жидкой фазе, так как коалесценция твердого зерна и жидкой капли, поскольку размер первого уже больше критического, сопровождается получением только твердого кристаллита [2]. Таким образом, образование твердого раствора высокой концентрации является подтверждением присутствия обоих металлов в жидком виде. Отсюда вытекает следующее: наличие твердого высококонцентрированного раствора при известной (малой температуре подложки) и уменьшении характерных размеров островковой пленки, до некоторого определенного, соответствует температуре термофлуктуационного плавления частиц соответствующего размера. Эти рассуждения легли в основу методики

исследования механизма образования сплавов и потребовали разработки соответствующих устройств для препарирования образцов.

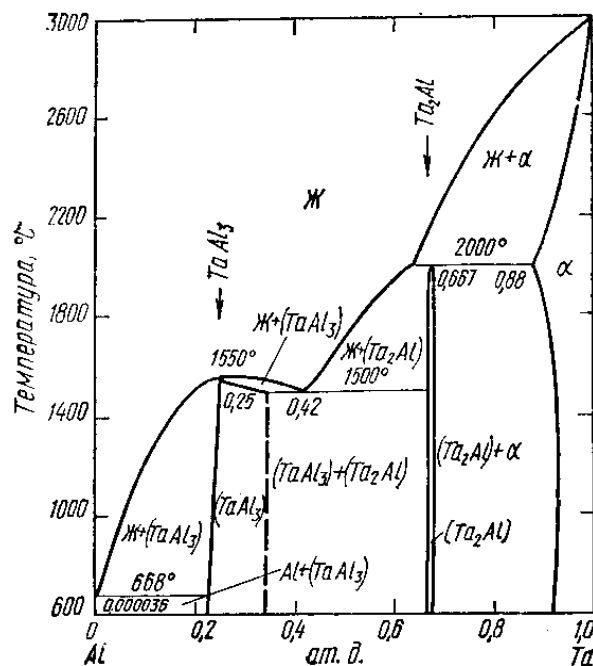


Рисунок 1 – Диаграмма состояния системы тантал-алюминий

Ранее выполнены исследования влияния размерного фактора на образование твердых растворов высокой концентрации. В качестве размерного фактора использована толщина (расчетная) чередующихся слоев металлов тантала и алюминия. Исследования выполнены для покрытия с концентрацией алюминия в тантале ~ 59 ат.%. Методика проведения исследования заключалась в постепенном уменьшении толщины слоев тантала и алюминия в результате каждого пересечения перемещающейся подложкой потока металлсодержащей плазмы. Толщину слоев меняли поочередным включением магнетронов, при котором на подложку наносили слои при прохождении потоков металлсодержащей плазмы 12, 8, 4, 2, 1 раз и непрерывном напылении. При этом толщина слоев составила для алюминия: 13,55 нм, 10,44 нм, 4,91 нм, 1,98 нм, 1,31 нм и 1,11 нм, для тантала - 10,9; 7,25; 3,68; 1,64; 0,92 и 0,81 нм соответственно. Причем потоки с разноименными частицами металлов разнесены на 180° друг относительно друга, что исключало образование твердых растворов высокой концентрации при касании или пересечении потоков. Кроме того, время перемещения подложки от осевой линии магнетронного распылителя до второго составляло 3 с, время достаточное для кристаллизации весьма малых частиц в предположении существования этого процесса. Образование ТРВК в этом случае являлось дополнительным подтверждением пребывания частиц металлов в жидком состоянии.

При этом получены следующие параметры решеток: β-тантал с тетрагональной решеткой, имеющей параметры  $a=1,0194$  нм,  $c=0,5313$  нм (короткопериодные слои по до 3,68 нм), алюминия  $a=0,4053\pm 0,0004$  нм (КПС до 4,91 нм). В пределах точности измерений параметр решетки алюминия соответствуют табличным значениям. Фаза алюминия плохо рентгенографируется на фоне фазы β-тантала, поскольку алюминий имеет значительно меньший атомный номер, а отражательная способность атомов пропорциональна квадрату числа электронов на орбитах атомов. Поэтому при равных концентрациях интенсивность рефлексов от алюминия в 32 раза меньше интенсивности рефлексов от тантала.

Установлено, что до толщины слоя тантала 3,68 нм и алюминия 4,91 нм система представлена отдельными рентгенографируемыми фазами, имеющими каждая свою кристаллическую решетку с табличными или несколько искаженными межатомными расстояниями и границу раздела фаз. При последующем понижении размера частиц (рисунок 2 б) наблюдается некоторое промежуточное состояние, при котором алюминий не выделяется в отдельную фазу, фиксируемую рентгенографически, но нет и твердого раствора, о чем можно судить по аморфизации металлов при переходе от фиксируемых в виде отдельных фаз металлов к твердому раствору алюминия в тантале (рисунок 2 а).

При достижении толщины субслоев 0,81 нм для бета-тантала и 1,11 нм для алюминия происходит самопроизвольное образование твердого раствора (рисунок 2 а) с типом кристаллической решетки легируемого металла, но измененным параметром вследствие присутствия второго металла.

Исследования показали, что в определенном диапазоне толщин напыляемых монослоев металлов (тантала и алюминия) происходит образование сверхструктур из упорядоченной системы нанокластеров. Однако не известно, является ли свойство упорядоченного размещения нанокластеров из металла второй компоненты присущим только танталу, или оно характерно и для других металлов. Для ответа на данный вопрос были проведены исследования влияния состава покрытия из чередующихся слоев тантала и алюминия на образование сверхрешеток нанокластеров одного металла в матрице второго металла.

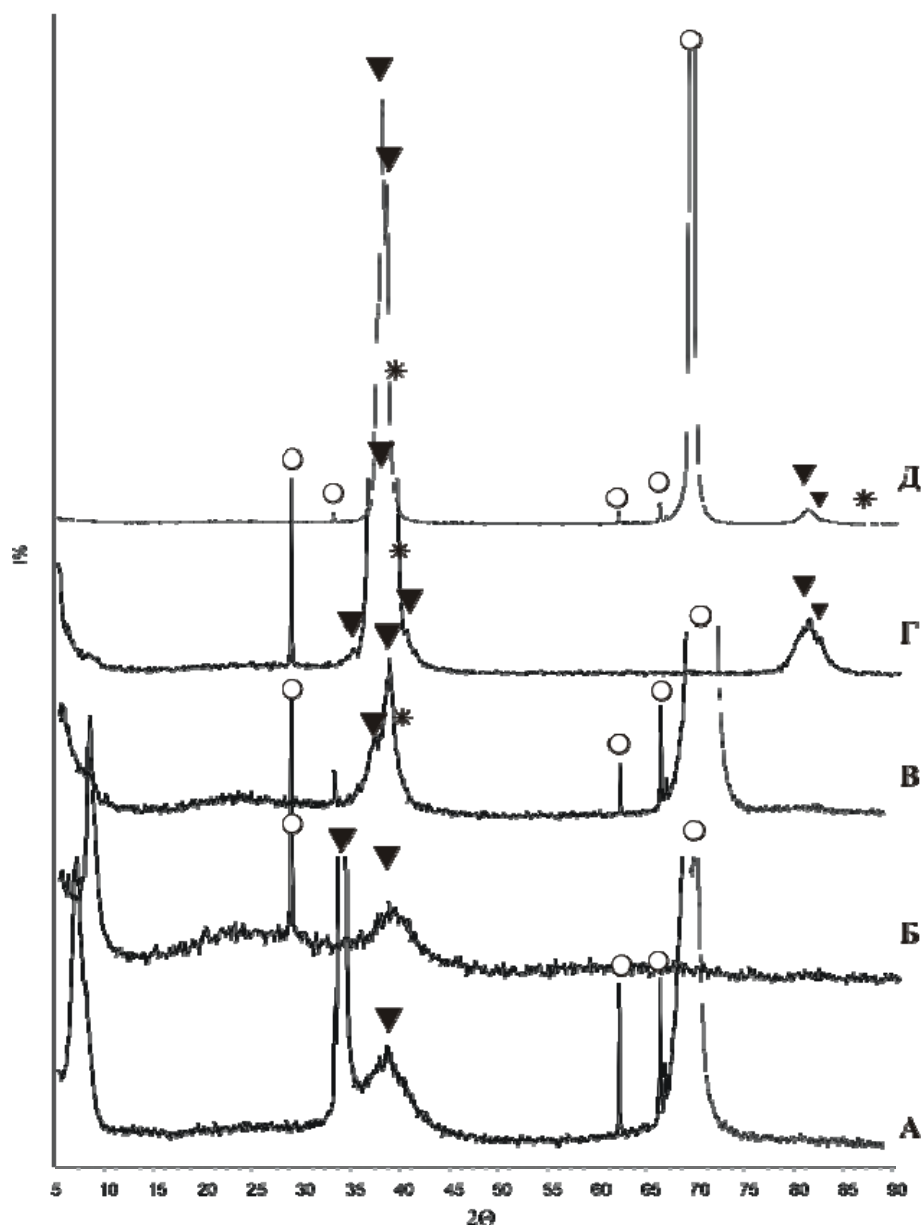
В этой связи технически реализован процесс послойного формирования покрытия из субслоев тантала и алюминия различной толщины с различным соотношением составляющих покрытие металлов.

Для приготовления образцов покрытий, представленных чередующимися слоями тантала и алюминия с регулируемой толщиной напыляемых слоев и изменяемым соотношением напыляемых металлов модернизирована ионно-плазменная установка с несколькими независимыми магнетронными распылительными системами, схема которой изображена на рисунке 3.

Установка представляет собой вакуумную камеру, на стенках которой размещены планарные магнетроны постоянного тока. При этом распыляемые мишени являются катодами, сзади которых расположены водоохлаждаемые магнитные системы. Внутри вакуумной камеры смонтирован цилиндр с возможностью вращения вокруг оси для крепления подложек и перемещения их относительно магнетронов.

Для управления толщинами субслоев металлов при напылении с использованием данной установки существует две возможности:

- изменять мощность распыления металла пропорционально желаемому изменению толщины напыляемых субслоев;
- поочередно включать распыляющие металл магнетроны при постоянной мощности в каналах распыления на время, кратной одному, двум, трем и т.д. оборотам барабана с расположенными на нем подложками.



а – 0,81 нм Ta/1,11 нм Al, б – 0,92 нм Ta/1,31 нм Al, в – 3,68 нм Ta/4,91 нм Al, г – 7,25 нм Ta/10,44 нм Al, д – 10,9 нм Ta/13,55 нм Al; о- Si ▼- β-тантал, \*- алюминий

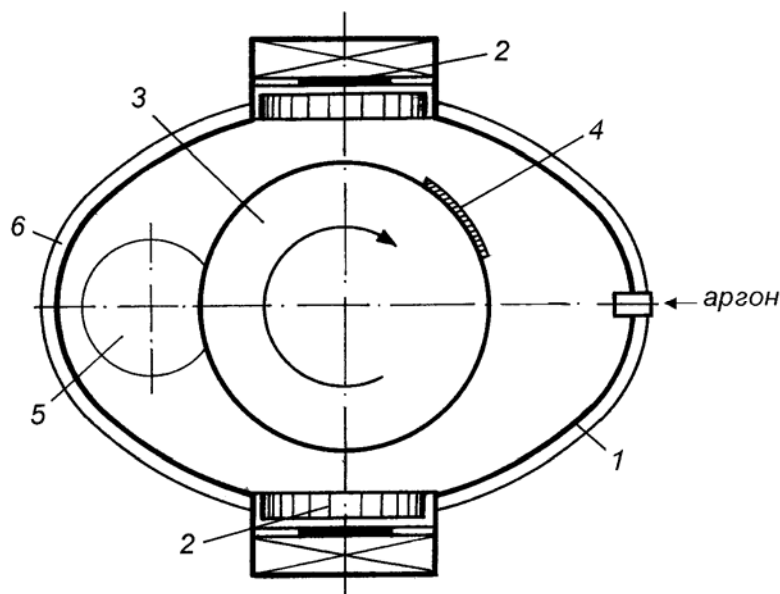
Рисунок 2 – Дифрактограммы покрытий системы тантал-алюминий, полученных при увеличении толщины напыляемых слоев

В первом случае напыление различных покрытий будет происходить при различных температурах подложек и разных энергетических состояниях частиц распыляемых металлов. Во втором случае температура и прочие параметры

распыления в течение всего процесса получения покрытий остаются постоянными, благодаря чему можно сравнивать друг с другом результаты получения покрытий из ниобия с другими металлами при изменении толщины субслоев.

Исходя из технологии формирования покрытий магнетронным способом путем поочередного нанесения нанометровых слоев отдельных металлов и стремления осаждаемых пленок нанометровой толщины к образованию островковых кластеров, величиной которых можно управлять, регулируя толщину отдельных субслоев металлов, исследованы условия образования сверхструктур в системе тантал-алюминий.

В качестве методики для исследования сверхструктур использован рентгеноструктурный анализ при съемке на малых ( $2\theta$  менее  $5^\circ$ ) углах. Данный вид исследований практически не используется при обычных рентгенографических исследованиях, так как в металлах практически не встречаются структуры с межплоскостным расстоянием более 1,5 нм. Съемка под малыми углами осложняется тем, что существует опасность засветки регистрирующего детектора прямым пучком излучения от рентгеновской трубки. Поэтому съемку под малыми углами производят с уменьшенной шириной коллимирующей щели, которая вместо 1 мм выставляется равной 0,2 мм. При этом съемка каждого исследуемого образца производится в двух угловых диапазонах:  $2\theta$  от  $1,5^\circ$  до  $5^\circ$  – на узкой щели и  $2\theta$  от  $2^\circ$  до  $100^\circ$  – на широкой щели.



1 - корпус вакуумной камеры; 2 - магнетроны; 3 - цилиндр; 4 - подложка; 5 - окно для эвакуации газов; 6 - кессон  
Рисунок 3 - Схема установки для формирования сплавов в покрытии

Ранее было показано, что размерной границей образования твердых растворов высокой концентрации являются следующие критические размеры, в качестве которых выбрана толщина островкового покрытия: 0,81 нм для бета-тантала и 1,11 нм для алюминия, при которых происходит самопроизвольное образование твердого раствора в результате термофлуктуационного плавления компонентов. Установлено, что до толщины слоя тантала 3,68 нм и алюминия 4,91 нм система представлена отдельными рентгенографируемыми фазами, имеющими каждая свою кристаллическую решетку с табличными или несколько искаженными межатомными расстояниями и границу раздела фаз. При последующем понижении размера частиц наблюдается некоторое промежуточное состояние, при котором алюминий не выделяется в отдельную фазу, фиксируемую рентгенографически, но нет и твердого раствора, о чем можно судить по аморфизации металлов при переходе от фиксируемых в виде отдельных фаз металлов к твердому раствору алюминия в тантале.

На дифрактограмме образца с средним содержанием алюминия 36,9 ат.% и толщиной слоев Та 3,9 нм/слой и Al 2,09 нм/слой смесь металлов представлена аморфной фазой от которой зафиксировано гало с максимумом на  $2\theta=38,2^\circ$ , а также два сверхструктурных пика

В этой связи были напылены покрытия из чередующихся слоев тантала и алюминия в широком диапазоне регулирования взаимных концентраций двух металлов вблизи промежуточного состояния между двухфазной и ТРВК. В таблице 1 приведены мощности напыления отдельных металлов, толщины отдельных монослоев и средняя концентрация алюминия в покрытии.

Проведены рентгенографические исследования полученных покрытий с использованием съемки скользящим пучком. При всех концентрациях алюминия, приведенных в таблице 1, при рентгенографических исследованиях установлено наличие сверхструктурных рефлексов. То есть условием образования сверхструктур в системе тантал-алюминий является технологический прием формирования сплавов ультрадисперсными частицами вследствие термофлуктуационного их плавления.

Проведено исследование влияния состава покрытий из чередующихся слоев тантала и алюминия на образование сверхрешеток нанокластеров одного металла в матрице другого. Условием образования сверхструктур в системе тантал-алюминий является промежуточное положение между образованием твердых растворов вследствие термофлуктуационного плавления и системой представленной отдельными фазами, то есть танталом и алюминием.

Таблица 1- Мощности в каналах распыления тантала и алюминия, толщины отдельных монослоев тантала и алюминия и усредненная концентрация алюминия в покрытии.

Мощность Ta, Вт	Мощность Al, Вт	Толщина единичного слоя Ta, нм	Толщина единичного слоя Al, нм	Концентрация Al, ат. %
150,5	40,2	1,77	0,87	36,9
111	68	1,5	1,5	53,1
67	61	0,86	1,16	59,7
56,5	111	0,8	2,27	76,2
11	75,6	0,15	1,4	90,9
5	75,6	0,06	1,22	95,6
5	151,2	0,06	2,5	97,8

### СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

- 1 Барабаш О.М., Коваль Ю.Н. Структура и свойства металлов и сплавов. Справочник. –Киев: Наукова Думка.- 1986. -598 с.
- 2 Скрипов В.П., Коверда В.П. Спонтанная кристаллизация переохлажденных жидкостей.- М.: Наука, 1984.- 232с.

### СТРУКТУРА И УСТАЛОСТНАЯ ДОЛГОВЕЧНОСТЬ СТАЛИ 20X13, ОБРАБОТАННОЙ ВЫСОКОИНТЕНСИВНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ

Ю.Ф. Иванов, Ю.А. Колубаева, А.Д. Тересов, В.Е. Громов, Н.Н. Коваль  
*Институт сильноточной электроники СО РАН, Томск, Россия*

#### Введение

Состояние поверхностного слоя является немаловажным фактором, оказывающим влияние на характер усталостного поведения материала. Предварительное упрочнение (а в отдельных случаях, пластификация) поверхностного слоя способно привести к повышению циклической прочности [1], долговечности [2], предела выносливости [3], многоциклового усталости [4] и т.д. Одним из методов кратного увеличения усталостной долговечности является обработка поверхности стали высокоинтенсивными электронными пучками субмиллисекундной длительности воздействия [5].

Целью настоящей работы является исследование структуры и усталостной долговечности предварительно закаленной стали 20X13, подвергнутой электронно-пучковой обработке.

#### Материал и методика исследования

В качестве материала исследования использовали сталь 20X13 [6], закаленную от температуры 980 °С (3 часа). Электронно-пучковую обработку осуществляли на установке «СОЛО» (ИСЭ СО РАН) [7]. Параметры облучения: длительность воздействия, количество и частота следования импульсов пучка электронов  $\tau = 50$  мкс;  $N = 3$  имп. и  $f = 0,3$  Гц; плотность энергии пучка электронов  $E_s = 10, 20$  и  $30$  Дж/см<sup>2</sup>, среда облучения – инертный газ аргон при остаточном давлении ~0,02 Па. Облучаемые образцы имели форму пластинок толщиной 5 мм и размерами – 8x14 мм<sup>2</sup>. Усталостные испытания проводили на специальной установке по схеме циклического несимметричного консольного изгиба на образцах в форме бруска длиной 145 мм, высотой 14 мм и толщиной 8 мм. Концентратор напряжений в форме полуокружности радиуса 10 мм, располагался на расстоянии 60 мм от свободного конца образца. Часть образцов перед усталостными испытаниями облучали электронным пучком с указанными выше параметрами. Облучению подвергалась лицевая поверхность (поверхность над концентратором напряжений) подготовленных для испытания образцов. Исследования поверхности электронно-пучковой обработки осуществляли на сканирующих электронных микроскопах SEM-515 «Philips» и «LEO EVO 50», микроструктуру и фазовый состав анализировали методами просвечивающей электронной дифракционной микроскопии на приборе ЭМ-125. Анализировали слои, расположенные на расстоянии 5 и 20 мкм от поверхности облучения, а также слой, включающий поверхность облучения.

#### Результаты исследования и их обсуждение

Проведены сравнительные испытания и установлено кратное (в ~2 раза при  $E_s = 30$  Дж/см<sup>2</sup>) увеличение усталостной долговечности облученной стали по отношению к необработанному материалу. Выполнены исследования поверхности разрушения и выявлено формирование в обработанных электронным пучком образцах многослойной структуры, образующейся с лицевой стороны (стороны, обработанной электронным пучком) образца. Очевидно, что первопричиной формирования данных слоев является термическое воздействие пучка электронов, приводящее, вследствие сверхвысоких скоростей нагрева и охлаждения, к созданию слоя, кристаллизующегося из расплава, слоя повторной закалки и слоя термического влияния.

Осуществлены исследования зеренной структуры поверхности облучения и приповерхностного слоя. Показано, что в результате высокоскоростной кристаллизации и последующего охлаждения в поверхностном слое стали формируется зеренная структура двух масштабных уровней. К первому из них отнесли зерна, размеры которых изменяются в пределах от 15 до 150 мкм; ко второму – зерна, размеры которых изменяются в пределах десятых долей – единиц микрометра. Зерна второго масштабного уровня располагаются по границам и в стыках границ крупных зерен. С увеличением плотности энергии пучка электронов объемная доля поверхностного слоя стали, занятая зернами второго масштабного уровня, увеличивается и при  $E_S = 30 \text{ Дж/см}^2$  достигает 95...100%. Средний размер зерен поверхностного слоя образца при данном режиме облучения составляет ~4 мкм (при среднем размере зерен стали в необлученном состоянии ~16 мкм).

Выполнены исследования поверхности электронно-пучковой обработки стали 20X13. Выявлено формирование в объеме зерен структуры ячеистой кристаллизации; размер ячеек кристаллизации изменяется в пределах 0,15-0,45 мкм (рис. 1). Формирование структуры ячеистой кристаллизации при облучении пучком с плотностью энергии  $E_S = 10 \text{ Дж/см}^2$  носит локальный характер; при  $E_S = 30 \text{ Дж/см}^2$  – повсеместный.

Осуществлены исследования фазового состава и микроструктуры стали 20X13 в исходном состоянии и после электронно-пучковой обработки.

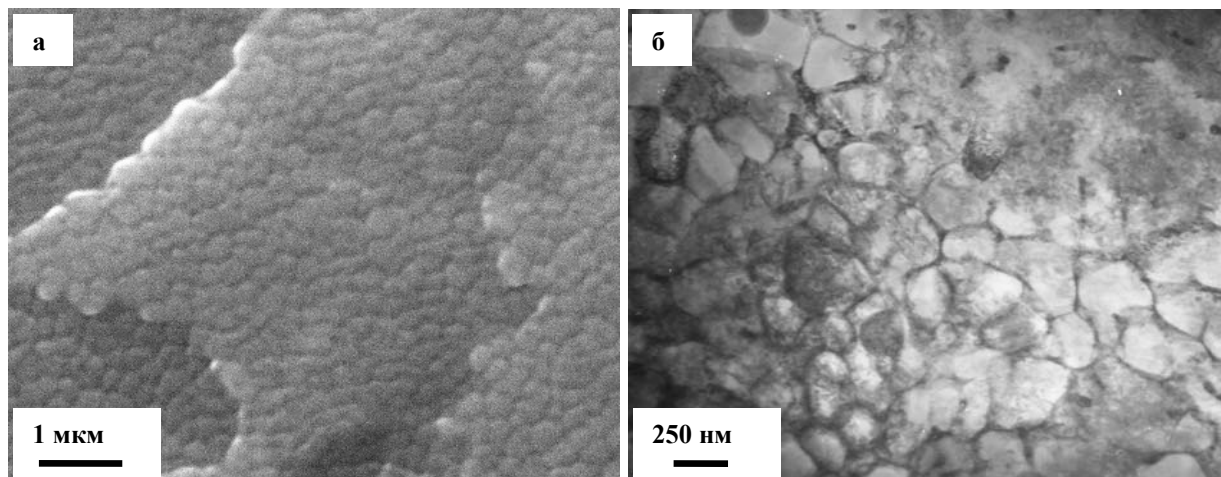


Рис. 1. Структура ячеистой кристаллизации, формирующаяся на поверхности электронно-пучковой обработки стали 20X13 при плотности энергии пучка электронов  $20 \text{ Дж/см}^2$ ; а – выявлено методами сканирующей электронной микроскопии; б – просвечивающей электронной микроскопии.

**Модификация фазового состава стали.** Установлено, что структура исходного состояния характерна для закаленной стали и сформирована кристаллами мартенсита. В объеме и по границам зерен выявлены частицы карбида типа  $(\text{Fe,Cr})_{23}\text{C}_6$ , глобулярной формы. Размеры частиц изменяются в пределах 150...300 нм. Электронно-пучковая обработка по режиму  $10 \text{ Дж/см}^2$ , 50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп. сопровождается преобразованием структуры стали преимущественно в температурной области существования  $\alpha$ -фазы. В отдельных случаях на поверхности облучения наблюдается  $\alpha \Rightarrow \gamma \Rightarrow \alpha$  превращение с формированием мартенсита пластинчатой морфологии и областей остаточного аустенита. В слое толщиной ~5 мкм проявляется эффект контактного плавления, имеющий место вдоль межфазной границы раздела частица карбидной фазы (карбид типа  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ ) / матрица и приводящий к формированию областей со структурой ячеистой кристаллизации (рис. 2). Фазовый состав данных областей: ячейки кристаллизации сформированы  $\alpha$ -фазой, прослойки, их разделяющие, – карбидом типа  $\text{Cr}_7\text{C}_3$  (возможно присутствие частиц исходного карбида типа  $\text{M}_{23}\text{C}_6$ ). В слое, расположенном на глубине ~20 мкм, фазовый состав стали подобен исходному. Электронно-пучковая обработка по режиму  $20 \text{ Дж/см}^2$ , 50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп. приводит к плавлению поверхностного слоя толщиной ~5 мкм. Высокоскоростная кристаллизация данного слоя сопровождается формированием ячеек кристаллизации: объем ячеек представлен  $\alpha$ -фазой, прослойки, их разделяющие, – карбидом хрома  $\text{Cr}_7\text{C}_3$  (реже, карбидом железа  $\text{Fe}_3\text{C}$ ). На глубине ~5 мкм наряду со структурой ячеистой кристаллизации присутствуют зерна, содержащие хаотически распределенные наноразмерные частицы карбида  $\text{Cr}_3\text{C}_2$  (рис. 3). В объеме зерен и субзерен выявляются кристаллы  $\epsilon$ -мартенсита (рис. 3).

На глубине 20 мкм протекает повторная закалка стали с образованием  $\alpha$ -мартенсита пакетного типа, размеры кристаллов которого в 3...4 раза меньше размеров кристаллов мартенсита, формирующихся при закалке данной стали в масло. По границам кристаллов мартенсита присутствуют прослойки остаточного аустенита.



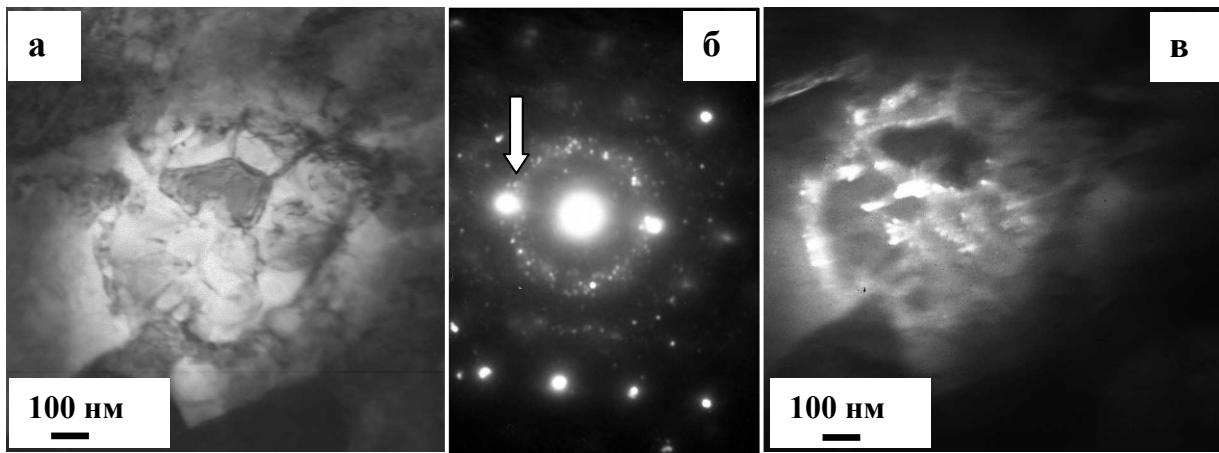


Рис. 2. Электронно-микроскопическое изображение структуры, формирующейся в результате контактного плавления объема материала, содержащего частицы карбида типа  $M_{23}C_6$ ; сталь 20X13, обработанная электронным пучком; а – светлопольное изображение; б – микроэлектронграмма; в – темное поле, полученное в совокупности рефлексов, указанных стрелкой на (б).

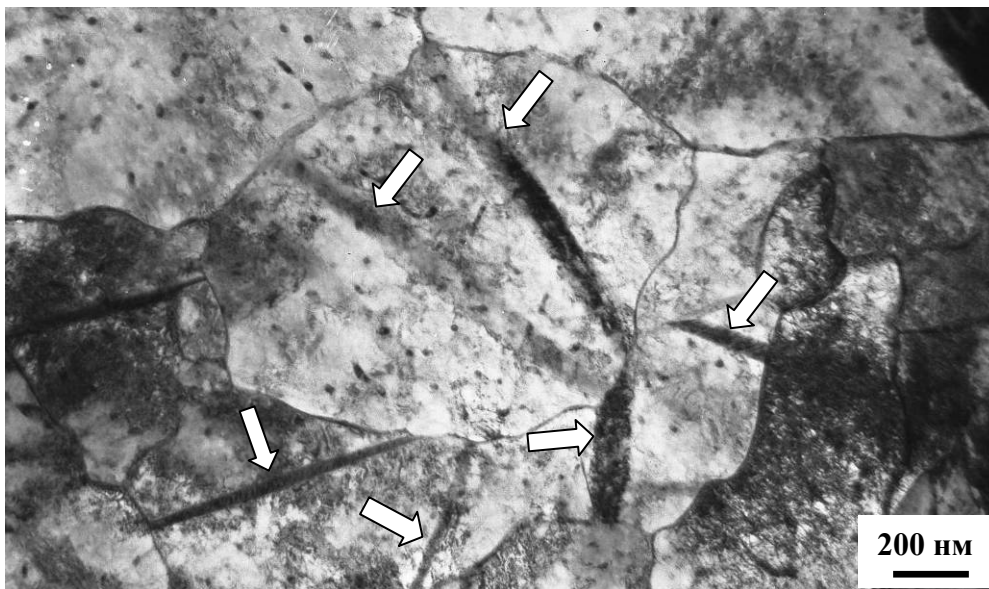


Рис. 3. Структура поверхностного слоя стали 20X13, обработанной высокоинтенсивным электронным пучком. Стрелками указаны кристаллы  $\epsilon$ -мартенсита.

Электронно-пучковая обработка по режиму  $30 \text{ Дж/см}^2$ , 50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп. приводит к плавлению поверхностного слоя толщиной  $\sim 8\text{-}10 \text{ мкм}$ . Высокоскоростная кристаллизация данного слоя приводит к формированию ячеистой структуры. Объем ячеек представлен  $\alpha$ -фазой, прослойки, разделяющие ячейки, – соединением  $\sigma$ -FeCr и карбидом хрома типа  $M_{23}C_6$ . В малом количестве присутствуют зерна  $\alpha$ -фазы, в которых прошла закалка стали с формированием кристаллов мартенсита; по границам кристаллов мартенсита присутствует  $\gamma$ -фаза в виде прослоек или островков. В слое, расположенном на глубине  $\sim 20 \text{ мкм}$  формируется многофазная структура, представленная островками  $\gamma$ -фазы (формирование  $\gamma$ -фазы осуществляется в результате обратного  $\alpha \Rightarrow \gamma$  превращения), частицами  $Cr_{15}Fe_9$ , расположенными по границам ячеек, образовавшихся в результате контактного плавления системы карбид типа  $M_{23}C_6$  / матрица, и частицами исходной карбидной фазы типа  $M_{23}C_6$ .

Таким образом, независимо от режима облучения в стали 20X13 формируется градиентная структура, фазовый состав которой определяется (при прочих фиксированных параметрах облучения) плотностью энергии пучка электронов (температурно-временным режимом обработки материала).

**Модификация внутризеренной структуры (субструктуры) стали.** Структура стали перед облучением электронным пучком (исходное состояние) представлена кристаллами мартенсита. Дислокационная субструктура в кристаллах мартенсита – сетки; скалярная плотность дислокаций очень высока  $\sim 10 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ , что характерно для кристаллов мартенсита сплавов на основе железа. Микроструктура стали исходного состояния характеризуется наличием изгибных экстинкционных контуров. Источниками контуров (источниками кривизны-кручения кристаллической решетки стали) являются, преимущественно, границы раздела кристаллов мартенсита.

Облучение поверхности стали электронным пучком при плотности энергии пучка электронов  $\sim 10 \text{ Дж/см}^2$  (50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп.) приводит к протеканию в поверхностном слое толщиной  $\sim 5 \text{ мкм}$  процесса рекристаллизации, в результате

чего средний размер зерен уменьшается более чем в 5 раз и составляет 3,0 мкм. В объеме наиболее крупных зерен наблюдается субзеренная структура. В объеме зерен и субзерен выявляется сетчатая дислокационная субструктура и субструктура дислокационного хаоса, скалярная плотность дислокаций  $\langle \rho \rangle \sim 5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Следовательно, при данном режиме облучения исходная мартенситная структура поверхностного слоя полностью разрушается.

В отдельных зернах фиксируется протекание процесса перезакалки стали с формированием мартенсита пластинчатой морфологии и областей остаточного аустенита. В кристаллах мартенсита присутствует сетчатая дислокационная субструктура ( $\langle \rho \rangle \sim 10 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ); в областях остаточного аустенита – структура дислокационного хаоса ( $\langle \rho \rangle \sim 1,8 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ). В поверхностном слое толщиной  $\sim 5$  мкм выявлен эффект контактного плавления, имеющего место вдоль межфазной границы раздела частица карбидной фазы – матрица. Размеры областей на поверхности облучения составляют 500...600 нм, области имеют округлую форму. Области фрагментированы, размеры фрагментов 100...150 нм. По границам фрагментов наблюдаются прослойки второй фазы толщиной 10...15 нм. На глубине  $\sim 5$  мкм размеры областей увеличиваются до  $\sim 1$  мкм; размеры фрагментов (ячеек кристаллизации), до 200 нм. Прослойки, разделяющие фрагменты, сформированы частицами карбида типа  $M_{23}C_6$  или  $Cr_7C_3$ .

На глубине  $\sim 20$  мкм фиксируется мартенситная структура исходного состояния и присутствуют глобулярные частицы карбидной фазы. Выявляется большое количество изгибных экстинкционных контуров различной толщины и формы. Источниками внутренних напряжений (концентраторами напряжений), приводящих к изгибу-кручению кристаллической решетки стали, являются внутрифазные границы (границы раздела зерен, кристаллов и пакетов мартенсита) и межфазные границы (границы раздела карбид / матрица). Поля напряжений формируются и в частицах карбидной фазы. Релаксация полей напряжений частиц карбидной фазы сопровождается формированием микротрещин вдоль границы раздела карбид / матрица и деформацией прилегающих к частице объемов  $\alpha$ -фазы (рис. 4, а). В последнем случае вокруг частицы формируется фрагментированная субструктура с размерами фрагментов, изменяющимися в пределах 40...60 нм (рис. 4, б).

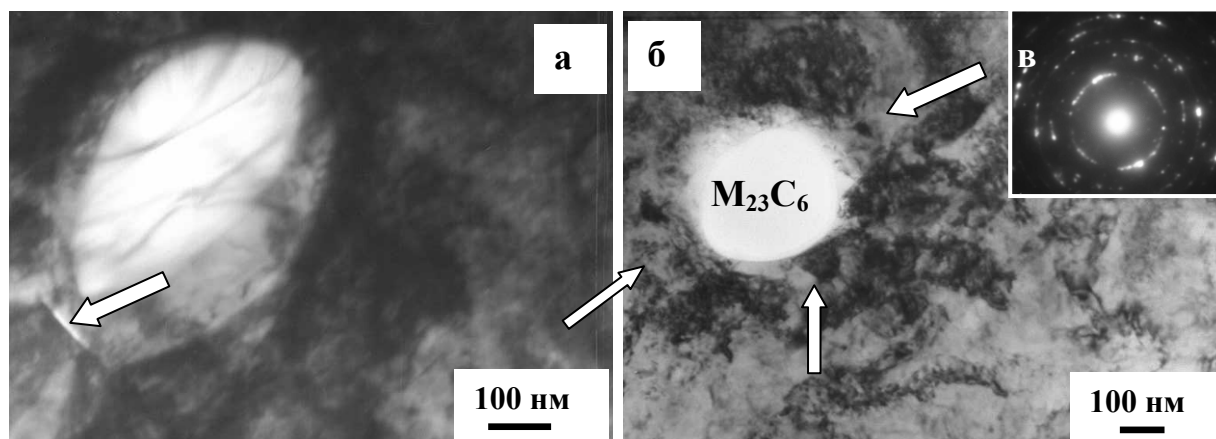


Рис. 4. Структура, формирующаяся в объеме стали, содержащем частицы карбида типа  $M_{23}C_6$ ; а, б – светлые поля; в – микроэлектроннограмма к (б). Стрелками указано: на (а) – микротрещина, расположенная вдоль границы раздела карбид/матрица; на (б) – фрагментированная субструктура приграничной области, разделяющей карбид и матрицу.

Таким образом, облучение стали электронным пучком с плотностью энергии пучка электронов  $10 \text{ Дж/см}^2$  приводит к формированию на глубине  $\sim 20$  мкм слоя, содержащего потенциально опасные элементы структуры, могущие привести к преждевременному разрушению материала.

Облучение поверхности стали электронным пучком при плотности энергии пучка электронов  $\sim 20 \text{ Дж/см}^2$  (50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп.) приводит к плавлению поверхностного слоя с последующим формированием зеренной структуры двух масштабных уровней – крупных зерен (средний размер 43,3 мкм) и мелких зерен (6,2 мкм), расположенных вдоль границ крупных. В слое толщиной  $\sim 5$  мкм в зернах формируется структура ячеистой кристаллизации (средний размер ячеек 0,25 мкм). В объеме зерен, субзерен и ячеек кристаллизации выявляется субструктура дислокационного хаоса или сетчатая дислокационная субструктура. Скалярная плотность дислокаций в структуре дислокационного хаоса  $\sim 2,5 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ ; в сетчатой субструктуре –  $7,1 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . В объеме зерен и субзерен наблюдаются пластины  $\epsilon$ -мартенсита. Слой, расположенный на глубине  $\sim 5$  мкм, характеризуется присутствием большого количества изгибных экстинкционных контуров. Источниками кривизны-кручения кристаллической решетки стали являются границы раздела зерен и субзерен, границы кристаллов  $\epsilon$ -мартенсита, частицы карбида хрома. На глубине  $\sim 20$  мкм обнаруживается структура, сформировавшаяся в результате частичной перезакалки стали; наряду с зернами, содержащими мартенситную структуру пакетного типа, обнаруживается зеренно-субзеренная структура. Субзерна формируются преимущественно вдоль границ зерен; размеры субзерен изменяются в пределах от 200 нм до 500 нм. В объеме зерен и субзерен выявляется сетчатая дислокационная субструктура, либо дислокации, распределенные хаотически; скалярная плотность дислокаций  $\sim 5,4 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ . Поперечные размеры кристаллов мартенсита изменяются в пределах от 50 нм до 100 нм. Это в 3...4 раза меньше поперечных размеров кристаллов мартенсита, формирующихся при закалке стали 20X13 в масле. В объеме кристаллов мартенсита выявляется сетчатая дислокационная субструктура; скалярная плотность дислокаций  $\sim 10 \cdot 10^{10} \text{ см}^{-2}$ .

Таким образом, при облучении стали электронным пучком с плотностью энергии пучка электронов  $20 \text{ Дж/см}^2$  к потенциально опасным элементам структуры, могущим привести к преждевременному разрушению материала, можно

отнести пластины  $\epsilon$ -мартенсита, формирующиеся в поверхностном слое толщиной  $\sim 5$  мкм. Ранее нами при усталостных испытаниях нержавеющей стали 08X18H10T было показано, что формирование  $\epsilon$ -мартенсита приводит к образованию микротрещин вдоль границы раздела кристаллов мартенсита и  $\gamma$ -матрицы [8].

Облучение поверхности стали электронным пучком при плотности энергии пучка электронов  $\sim 30$  Дж/см<sup>2</sup> (50 мкс, 0,3 Гц, 3 имп.) приводит к формированию в слое толщиной  $\sim 5$  мкм ячеек кристаллизации; размеры ячеек изменяются в пределах от 150 нм до 400 нм. Ячейки кристаллизации разделены прослойками второй фазы ( $\sigma$ -FeCr или  $M_{23}C_6$ ), толщина которых изменяется в пределах 20...40 нм. В объеме ячеек кристаллизации выявляется дислокационная субструктура сетчатого типа. Скалярная плотность дислокаций составляет  $\sim 4,5 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>. По мере удаления от поверхности облучения ячейки кристаллизации исчезают; наблюдается формирование зеренно-субзеренной структуры. В объеме зерен и субзерен выявляется дислокационная субструктура сетчатого типа. Скалярная плотность дислокаций составляет  $\sim 7,0 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>. В объеме зерен и субзерен присутствуют частицы округлой формы размером 20...40 нм. В отдельных зернах наблюдается мартенситная структура пакетного типа. В объеме кристаллов мартенсита выявляется сетчатая дислокационная субструктура; скалярная плотность дислокаций  $\sim 10 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>.

На расстоянии  $\sim 20$  мкм от поверхности облучения фиксируется образование субзеренной структуры, очевидно, в результате протекания процесса термического преобразования мартенситной структуры исходного состояния. Размеры субзерен изменяются в пределах от 1 мкм до 2 мкм. В объеме субзерен выявляется дислокационная субструктура сетчатого типа, скалярная плотность дислокаций  $\sim 5 \cdot 10^{10}$  см<sup>-2</sup>. Присутствие в стали частиц карбида  $M_{23}C_6$  привело к контактному плавлению с образованием ячеек кристаллизации. Размеры объемов со структурой ячеистой кристаллизации изменяются в пределах от 0,5 мкм до 1,0 мкм; размеры ячеек изменяются в пределах от 80 нм до 200 нм. Ячейки разделены тонкими (20...30 нм) прослойками соединения  $Cr_{13}Fe_9$ .

Таким образом, анализ микроструктуры стали, облученной электронным пучком с плотностью энергии пучка электронов 30 Дж/см<sup>2</sup>, не выявил наличия потенциально опасных элементов структуры, могущих способствовать преждевременному разрушению материала.

#### **Заключение**

Выполнены испытания и выявлено кратное (в  $\sim 2$  раза) увеличение усталостной долговечности стали 20X13, подвергнутой электронно-пучковой обработке в режиме плавления поверхностного слоя. Осуществлены структурно-фазовые исследования и показано, что независимо от режима облучения в стали 20X13 формируется градиентная структура, фазовый состав которой определяется (при прочих фиксированных параметрах облучения) плотностью энергии пучка электронов (температурно-временным режимом обработки материала). На основании выполненных исследований можно высказать предположение, что основной причиной повышения усталостной долговечности стали 20X13 является кратное (3-5 раз) уменьшение среднего размера зерна поверхностного слоя и растворение глобулярных частиц карбида типа  $M_{23}C_6$ .

*Работа выполнена при частичной финансовой поддержке гранта президиума РАН (проект №27.4).*

#### **Литература**

1. Qian J., Fatemi A. Cyclic deformation and fatigue behavior of ion-nitrided steel // Intern J. Fatigue. – 1995. – V.17, №17. – P.15-24.
2. Grosskreutz J.C. Strengthening and fracture in fatigue (Approaches for achieving high fatigue strength) // Met. Trans. – 1972. – V.38, №5. – P.1255-1262.
3. Иванова В.С., Терентьев В.Ф., Коган И.С. и др. Влияние поверхностного легирования на механические свойства и характеристики усталости молибдена // Физика и химия обработки материалов. – 1979. - №2. – С.136-143.
4. Wang Hong W., Yang D.Z., Shi W.D., Patu S. High cycle fatigue life improvement of polycrystalline alpha-iron modified by silver, chromium, aluminum and yttrium ion implantation // Scr. Met. et mater. – 1995. – V.32, №12. – P.2001-2007.
5. Иванов Ю.Ф., Воробьев С.В., Коновалов С.В., Громов В.Е., Коваль Н.Н. Физические основы повышения усталостной долговечности нержавеющей сталей. - Новокузнецк: Изд-во «Интер-Кузбасс», 2011. – 302 с.
6. Марочник сталей и сплавов / Под ред. В.Г. Сорокина. – М.: Машиностроение, 1989. - 640 с.
7. Иванов Ю.Ф., Коваль Н.Н. Низкоэнергетические электронные пучки субмиллисекундной длительности: получение и некоторые аспекты применения в области материаловедения – Гл.13 в книге «Структура и свойства перспективных металлических материалов». – С.345-382 / Под общ. ред. А.И. Потекаева. – Томск: Изд-во НТЛ, 2007. – 580 с.
8. Иванов Ю.Ф., Коваленко В.В., Козлов Э.В., Громов В.Е. Градиентные структурно-фазовые состояния в сталях. – Новосибирск: Наука, 2006. – 280 с.

## **ТЕПЛОВИЗИОННАЯ ДИАГНОСТИКА ГЕОМЕТРИЧЕСКОГО ПРОФИЛЯ И ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ИМПУЛЬСНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА**

Сазонов Р.В., Пономарёв Д.В., Холодная Г.Е., Исакова Ю.И.

*Национальный исследовательский Томский политехнический университет*

634050, Россия, г. Томск, пр. Ленина, 30, Тел. 8 (3822) 418540, E-mail: galina\_holodnaya@mail.ru

*Представлена методика оперативного контроля параметров импульсного электронного пучка гигаватной мощности. Методика обеспечивает регистрацию пространственного распределения плотности энергии по сечению,*

измерение полной энергии электронного пучка и энергетического спектра электронов. Диагностика основана на измерении теплового отпечатка электронного пучка в материале с низкой объемной плотностью и низкой теплопроводностью. В отличие от методики с использованием радиочувствительных (дозиметрических) материалов, тепловизионная диагностика не требует дорогостоящих расходных материалов и много времени на обработку. Пространственное разрешение тепловизионной диагностики составляет 1 мм, чувствительность тепловизора Fluke Ti10 обеспечивает регистрацию теплового отпечатка за один импульс при плотности тока 0,1-0,4 кА/см<sup>2</sup>.

### Введение

Широкое применение импульсных электронных пучков для накачки газовых лазеров, инициирования неравновесных плазмохимических процессов требует формирования электронных пучков большой площади с высокой однородностью плотности энергии по сечению. Для измерения распределения энергии пучка в поперечном сечении обычно используют секционированный калориметр. Для обеспечения высокого пространственного разрешения профиля энергии электронного пучка при площади пучка более 20 см<sup>2</sup> требуется сложная конструкция калориметра и процесс измерения занимает много времени [1]. В работе [2] для измерения распределения энергии импульсного электронного пучка в поперечном сечении предложена радиационно-акустическая диагностика. Она основана на регистрации акустических волн, возникающих в стержне при диссипации энергии электронного пучка. Выполненные исследования показали, что разрешающая способность такой диагностики при исследовании распределения энергии импульсного электронного пучка (450 кВ, 6 кА, 50 нс) в поперечном сечении хуже 5 мм. В работах [3,4] представлена методика измерения распределения плотности энергии пучка в поперечном сечении с помощью дозиметрической пленки ПОР (5...50 кГр). Она позволяет измерять неоднородность плотности энергии импульсного электронного пучка с пространственным разрешением выше 1 мм при измерении абсолютных значений плотности энергии. Но методика с использованием радиочувствительных материалов требует дорогостоящих расходных материалов и много времени на обработку. Использовать тепловизор для измерения распределения плотности энергии импульсного ионного пучка впервые предложили в 1997 году Davis, Bartsch, Olson, Rej, and Waganaar [5]. Целью представленной работы является разработка тепловизионной методики оперативного контроля параметров импульсного электронного пучка гигаватной мощности.

### 1. Экспериментальная установка

Эксперименты проводились на импульсном электронном ускорителе ТЭУ-500 с параметрами: ускоряющее напряжение 350-450 кВ, длительность импульса на полувысоте 100 нс, суммарная кинетическая энергия электронов в импульсе до 250 Дж [6]. Для измерения распределения плотности энергии импульсного электронного пучка по сечению использовали тепловой отпечаток электронного пучка в материале с низкой объемной плотностью и низкой теплопроводностью. Эксперименты выполнены с использованием пенополистирола (СПб-25) и тепловизора Fluke Ti10. Схема измерения показана на рисунке 1.

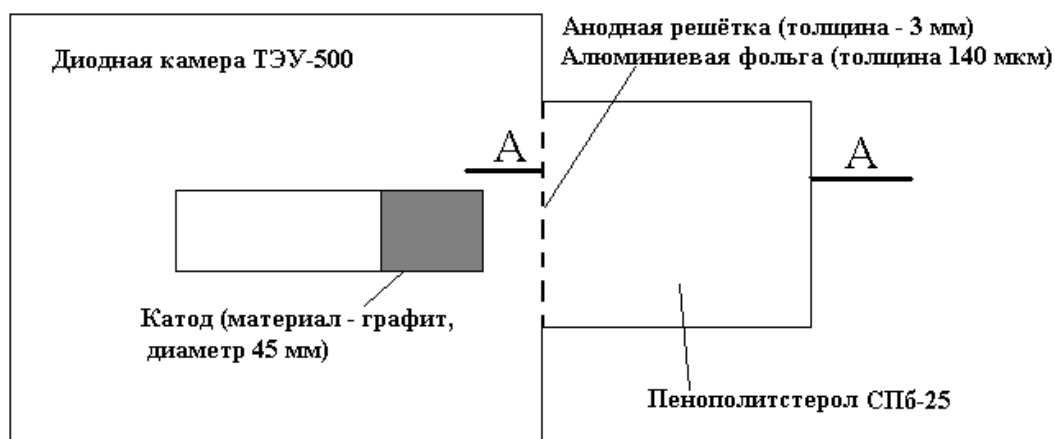


Рисунок 1 – Схема эксперимента (А-А – сечение в пенополистироле)

На рисунке 2 приведены типичные осциллограммы напряжения, приложенного к диоду, полного тока и тока электронного пучка.

Отличительной особенностью конструкции ускорителя является использование повышающего трансформатора, включенного между двойной формирующей линией (ДФЛ) и диодом. Насыщение сердечника трансформатора во время зарядки ДФЛ позволило значительно уменьшить амплитуду предимпульса и его влияние на работу диода без применения обостряющего разрядника. Выполненные исследования показали, что в случае предварительного размагничивания сердечника согласующего трансформатора форма импульса напряжения, формируемого наносекундным генератором (ДФЛ и трансформатор), близка к оптимальной, учитывающей уменьшение импеданса диода за счет разлета взрывоэмиссионной плазмы [7]. Это позволяет согласовать диод с генератором в течение генерации электронного пучка.

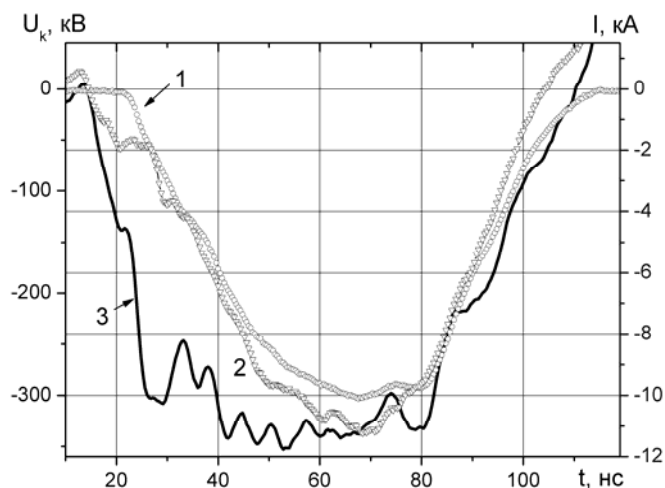


Рисунок 2 – Осциллограммы тока электронного пучка (1), полного тока диода (2) и напряжения, приложенного к планарному диоду (3). Катод- графит, диаметр 45 мм

Для измерения энергетического спектра электронов была изготовлена пенополистироловая мишень с разрезом по диаметру (см. рисунок 3).



Рисунок 3 – Пенополистироловая мишень

После облучения мишени импульсным пучком регистрировали тепловизором тепловое изображение на внутренней поверхности мишени.

### 2. Измерение распределения плотности энергии по сечению

Распределение плотности энергии по сечению является одним из важнейших параметров импульсного электронного пучка. Разработанная тепловизионная диагностика позволяет оперативно контролировать режим работы диода. На рисунке 4 приведен типичный тепловой отпечаток импульсного электронного пучка в пенополистироле толщиной 10 мм и результаты обработки тепловых отпечатков по программе SmartView™. В слое толщиной 10 мм происходит поглощение электронов с энергией до 100 кэВ.

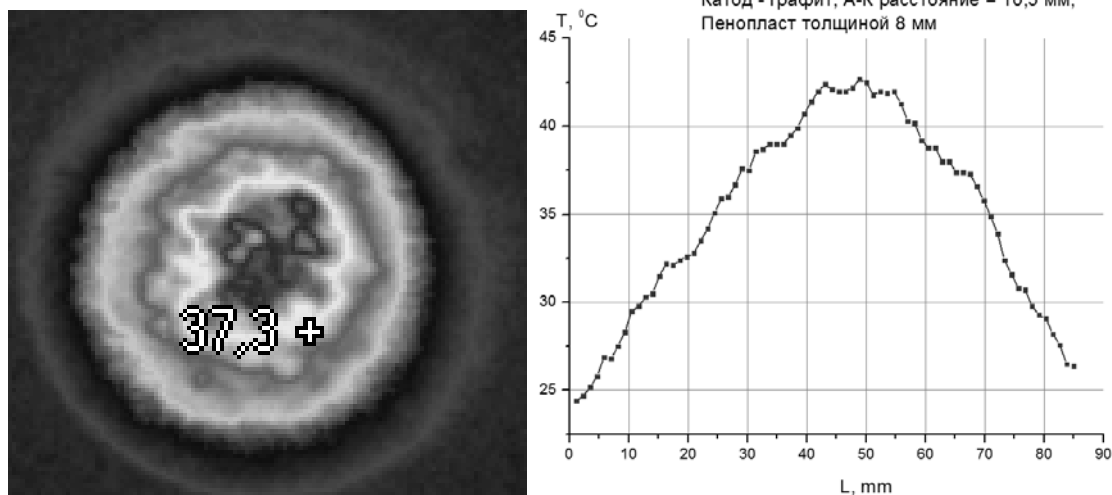


Рисунок 4 –Тепловой отпечаток электронного пучка и распределение температуры в горизонтальном сечении отпечатка. Катод-графит.

В случае увеличения анод-катодного зазора в центре диода из-за прогиба анодной решетки или разрушения катода плотность электронного тока снижается (см. рисунок 5).

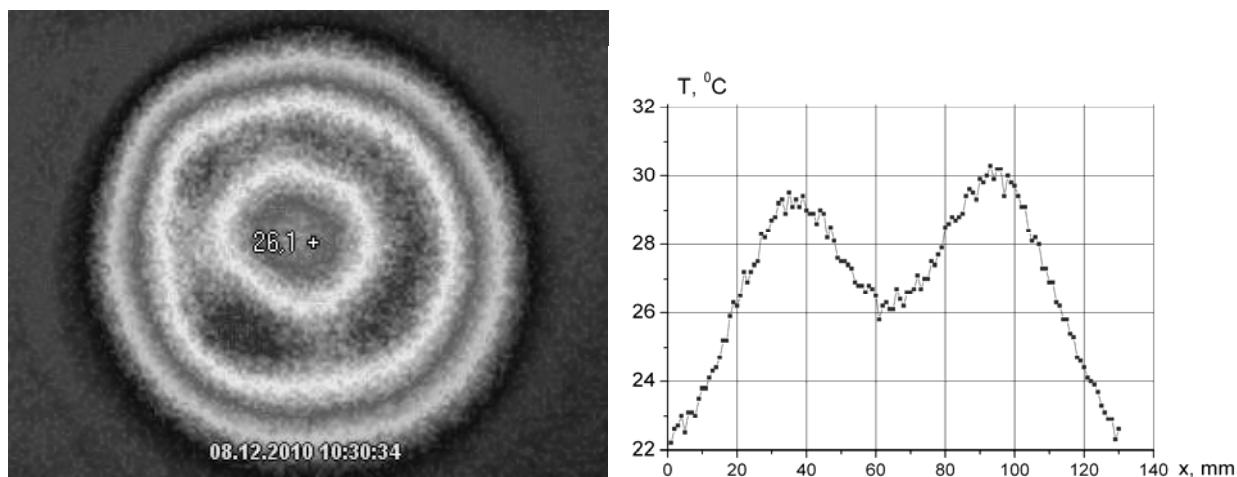


Рисунок 518 – Тепловой отпечаток импульсного электронного пучка и распределение температуры в горизонтальном сечении

Регистрация теплового отпечатка происходит в течение 1-2 секунд, что позволяет оперативно контролировать режим работы диода. Пенополистироловая мишень не разрушается при облучении и может быть использована многократно.

### 3. Измерение энергетического спектра электронов.

Энергетический спектр электронов определяет область энерговыделения электронного пучка при его диссипации. При использовании сильноточного электронного пучка для проведения плазмохимических процессов, радиолитического распада жидкофазных соединений и математического моделирования химических превращений важно контролировать спектр электронов. Для измерения энергетического спектра электронов в образце из пенополистирола предварительно сделали разрез по диаметру. После облучения мишени импульсным электронным пучком разрезанную мишень открывали и регистрировали тепловое изображение на внутренней поверхности. Типичное распределение температуры по глубине мишени показано на рисунке 6. Катод - графит, диаметр 45 мм, зазор 10.5 мм, 1 импульс. Размер мишени 90 мм×55 мм. Направление движения электронов – снизу вверх.

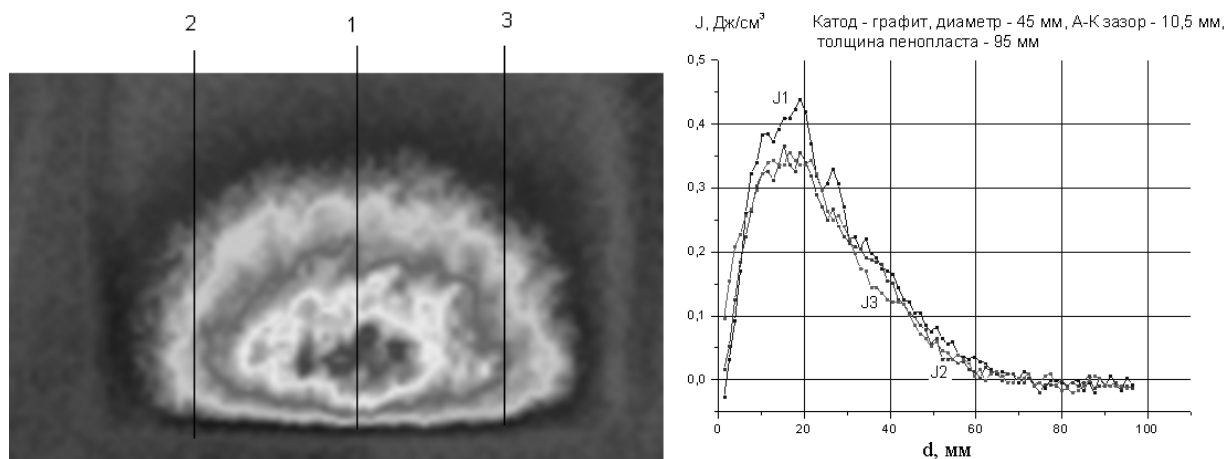


Рисунок 6 – Тепловое изображение и распределение энерговыделения электронного пучка по глубине мишени, 1 импульс. J1, J2, J3 соответствуют трем разным сечениям

По данным распределения температуры по глубине мишени было рассчитано удельное энерговыделение (поглощенная доза) электронного пучка. Расчет выполнен для плотности 0,02 г/см<sup>3</sup> и теплоемкости 1,65 Дж/(г·град).

Для определения изменения спектра электронного пучка, формируемого в разных точках катода, кривые поглощения были нормированы на максимальную плотность энерговыделения (см. рисунок 7).

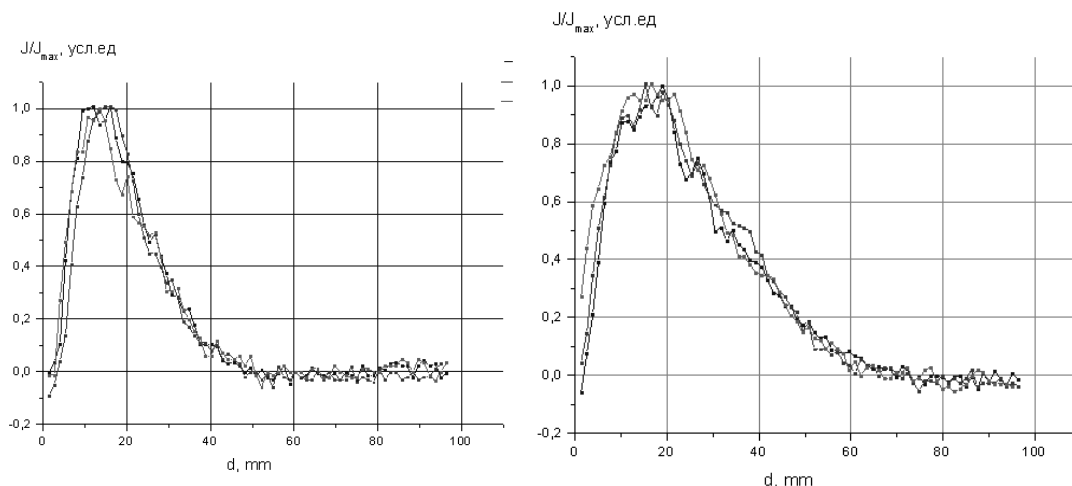


Рисунок 7 – Распределение нормированного энергосвечения по глубине мишени. Катод – графит, анод-катодный зазор 10.5 мм (а) и 13 мм (б).

Проведенные исследования показали, что распределение по глубине мишени поглощенной дозы электронного пучка, формируемого в разных областях катода, отличается незначительно. Поэтому спектр электронного пучка в данном режиме одинаков по сечению. С увеличением анод-катодного зазора увеличивается ускоряющее напряжение и энергия электронов. Это ведет к увеличению пробега электронов в мишени.

По распределению поглощенной дозы по глубине мишени путем решения обратной задачи можно рассчитать спектр электронного пучка. Разработанная методика позволяет определить энергетический спектр электронов, генерируемых с разных точек катода, с пространственным разрешением 1-2 мм.

**4. Сравнительный анализ спектров электронов для разных катодов.**

Разработанная тепловизионная диагностика была использована для анализа спектра электронов пучка, формируемого в плоском диоде с взрывоэмиссионным катодом разной конструкции. Были исследованы: катод графитовый катод сплошной (диаметром 45 и 60 мм), катод с покрытием из углеродной ткани, многоигольчатый вольфрамовый катод и др. Часть экспериментальных данных показана на рисунке 8.

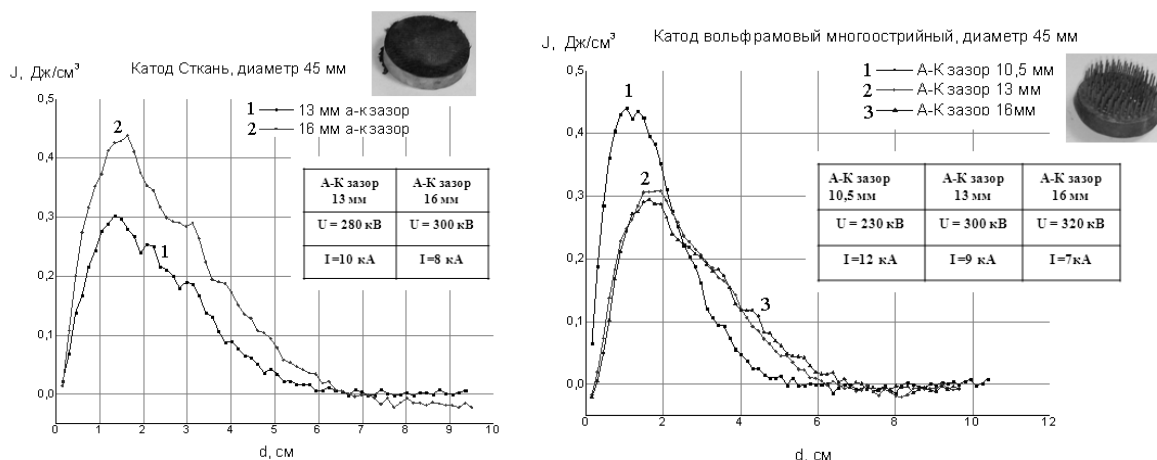


Рисунок 8 – Распределение нормированного энергосвечения электронного пучка по глубине мишени. Катод с покрытием из углеродной ткани (а) и многоигольчатый катод (б).

Выполненные исследования показали, что для катода из графита для анод-катодного расстояния 13 мм значение энергосвечения электронного пучка и пробег электронов максимальны. Получено, что для катода из углеродной ткани и многоострийного вольфрамового катода значение энергосвечения электронного пучка не превышает 0.4 Дж/см³ (20 кГр), а максимальный пробег электронов в этих случаях не превышает 5-6 см. Для катода из углеродной ткани характерно наличие высокоэнергетических электронов, об этом можно судить по «размытому хвосту», наблюдаемому на графике. А для многоострийного вольфрамового катода, наоборот, характерно наличие низкоэнергетических электронов. Таким образом, для наиболее эффективной работы импульсного электронного ускорителя перспективно использовать катод из графита и при анод-катодном расстоянии 13 мм.

**Заключение**

Выполненные эксперименты по тестированию разработанной тепловизионной диагностики для измерения параметров пучка при различных режимах работы импульсного электронного ускорителя ТЭУ-500 показали, что разработанная методика позволяет оперативно регистрировать распределение плотности энергии по сечению, определить энергетический спектр электронов, генерируемых с разных точек катода, с высоким пространственным разрешением. Пространственное разрешение тепловизионной диагностики составляет 0.9 мм, чувствительность



тепловизора Fluke Ti10 обеспечивает регистрацию теплового отпечатка за один импульс при плотности тока 0,1-0,4 кА/см<sup>2</sup>.

*Работа выполнена при финансовой поддержке Федеральной целевой программы (ГК П842).*

**Литература**

1. Москалев В.А., Сергеев Г.И. Измерение параметров пучков заряженных частиц. – М.: Энергоатомиздат, 1991. – 240 с.
2. Pushkarev A., Isakova J., Kholodnaya G., Sazonov R. Sound Waves Generated Due to the Absorption of a Pulsed Electron Beam // *Advances in Sound localization*, chapter 12, pp. 199-223 - ISBN 978-953-307-581-5 - Vienna: INTECH, 2011. (81402057).
3. Гончаров Д.В., Ежов В.В., Пушкарев А.И., Ремнев Г.Е. Исследование распределения плотности энергии сильноточного импульсного электронного пучка // *Известия Томского политех. универ.* – 2005. – Т. 308, №6. – С. 76 – 80.
4. Холодная Г.Е., Сазонов Р.В. Исследование распределения плотности энергии импульсного электронного пучка с помощью дозиметрических плёнок // *Современные техника и технологии: Сборник трудов XV Международная научно-практическая конференция студентов и молодых учёных «Современные техника и технологии».* – 2009. – Т. 3 – С. 124 – 126.
5. H.A. Davis, R.R. Bartsch, J.C. Olson, D.J. Rej, and W.J. Waganaar. *J. Appl. Phys.* 82 (7), 3223 (1997).
6. Ремнев Г.Е., Фурман Э.Г., Пушкарев А.И., Карпузов С.Б., Кондратьев Н.А., Гончаров Д.В. Импульсный сильноточный ускоритель с согласующим трансформатором // *Приборы и техника эксперимента.* – 2004. – № 3. – С. 130–134.
7. Г.Е. Ремнев, А.И. Пушкарев, Э.Г. Фурман. Согласование двойной формирующей линии с взрывоэмиссионным диодом // *Письма в ЖТФ*, 2004, том 30, вып. 14, с.63-67.

**ТЕРМОГЕНЕРАЦИЯ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ С БИОЛОГИЧЕСКИМИ ТКАНЯМИ**

А.Н. Алмалиев<sup>1</sup>, И.С. Баткин<sup>2</sup>, М.А. Долгополов<sup>1</sup>, И.В. Копытин<sup>1</sup>,  
П.В. Лукин<sup>1</sup>, Т.А. Чуракова<sup>1</sup>

<sup>1</sup> *Воронежский госуниверситет, г. Воронеж, Россия*

<sup>2</sup> *Оттава университет, Оттава, Канада*

Двигаясь в конденсированной среде, частица, помимо электромагнитного излучения, испускает также акустические волны. При этом преобладающим является терморadiационный механизм генерации звука, когда часть потерянной в ходе торможения частицы энергии поглощается средой, повышая ее температуру на треке частицы. В результате молекулы среды расталкиваются, порождая акустические волны вдоль траектории частицы. Такой источник акустического поля принято называть термоакустической антенной [1].

Интенсивность звука определяется скоростью потери энергии частицей в среде. Если заряженная частица быстрая, то на графике энергетических потерь будет максимум, называемый пиком Брэгга, на глубине, почти равной длине пробега частицы. Обычно при оценках характеристик источника звука выбирается сам пик Брэгга. В данной работе учитывалось также и излучение от участков, предшествовавших этому пику.

Длина звуковой волны пропорциональна ширине пучка введенных в среду частиц, а ее амплитуда – интенсивности энергетических потерь. Кроме того, формирование волны зависит от таких параметров среды, как скорость звука ( $c$ ), коэффициент объемного теплового расширения ( $\beta$ ) и удельная теплоемкость ( $C_p$ ). Их комбинация составляет параметр Грюнрайzena

$$\Gamma \equiv c^2 \beta / C_p . \tag{1}$$

Теоретическое рассмотрение, как правило, основывается на решении неоднородного волнового уравнения, которое для жидких сред имеет вид

$$\frac{\partial^2 p}{\partial t^2} - c^2 \Delta p = \Gamma \frac{\partial Q}{\partial t} . \tag{2}$$

Здесь  $p$  – звуковое или избыточное давление в данном месте системы в данный момент времени,  $Q$  – функция, характеризующая энерговыделение проникающего излучения или плотность мощности тепловых источников звука [1].

Нами исследовалась генерация ультразвука пучком протонов с начальной энергией 200 МэВ, движущихся в воде. Моделирование основывалось на расчете поведения одной частицы в среде, а амплитуда акустической волны получена в относительных единицах в предположении, что ее абсолютное значение будет линейно зависеть от количества протонов в пучке. Также не учитывалось затухание звука в воде вида  $1/r^2$ . Целью исследования являлось качественное описание процесса генерации ультразвука движущейся в среде быстрой тяжелой заряженной частицей с помощью подходящей математической модели.

Вычисление потерь энергии протона выполнялся путем численного решения уравнения Бете-Блоха для нерелятивистского случая:

$$-\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi n_e e^4 Z^2}{mv^2} \ln \frac{2mv^2}{I}, \quad (3)$$

где  $E$  – кинетическая энергия протона,  $n_e$  – концентрация электронов в среде,  $m$ ,  $e$  – масса и энергия электрона соответственно,  $Z$  – заряд налетающей частицы в единицах  $|e|$ ,  $v$  – скорость частицы,  $I$  – потенциал ионизации молекул среды,  $x$  – координата частицы.

Длина пробега составляет для данного случая  $L \approx 25$  см. При расчете избыточного давления использовалась модель, в которой акустические волны испускались цепочкой сферических излучателей. Они располагались равномерно вдоль трека частицы от места ее входа в среду до точки полного торможения. При этом учитывалось, что начальное давление у поверхности излучателя ( $p_{0k}$ ) пропорционально потере энергии частицы при ее движении от предыдущего излучателя к последующему. В итоге для поля давления  $k$ -го источника получается выражение:

$$p_k(R_k, \tau) = p_{0k}/R_k [\theta(\eta_k) - \theta(\eta_k - M\lambda)] \sin(2\pi\eta_k/\lambda) \sin(2\pi\eta_k/M\lambda). \quad (4)$$

Здесь  $\eta_k \equiv \tau - d_k - R_k$ , где  $\tau \equiv ct$  – наблюдаемый момент времени в единицах длины,  $R_k$  – расстояние от  $k$ -го источника до произвольной точки поля, радиус источника считается пренебрежимо малым,  $\lambda$  – длина волны,  $M$  – импульс в единицах длины волны,  $d_k$  – задержка возбуждения  $k$ -го источника, которая в нашем случае стремится к нулю, так как скорость протона значительно превышает скорость звука, то есть полагалось, что все источники излучают одновременно,  $\theta(x)$  – ступенчатая функция Хэвисайда [2]. Искомое звуковое давление в среде рассчитывалось как результат интерференции волн, генерируемых всеми источниками в их цепи.

Расчеты производились при следующих значениях параметров:  $\lambda = 2,5$  см,  $M = 1$ , ширина пучка  $\lambda/2$ , на треке располагалось 100 излучателей, температура воды 300 К. Координата  $x$  на рисунках соответствует положению волны в направлении движения протона, ось  $y$  перпендикулярна ему на горизонтальной плоскости, проходящей через трек. Место входа частицы в воду отложено в точке с координатами (0, 0).

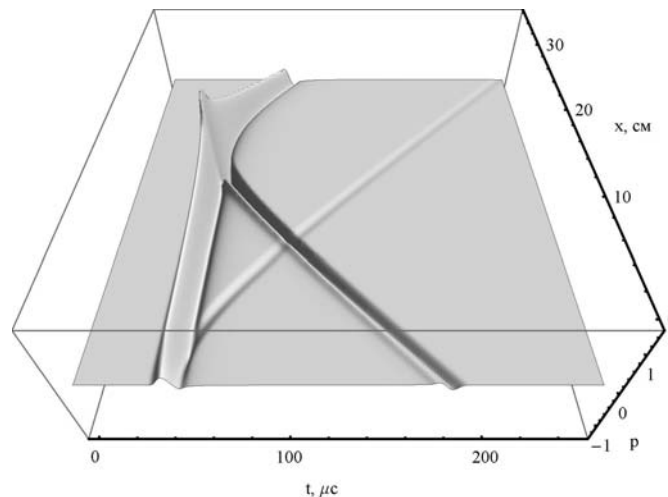


Рис. 1. Формирование акустического поля в ближней зоне термоакустической антенны на расстоянии  $y = 6$  см от центра пучка. Ось абсцисс – расчетное время наблюдения избыточного давления, отложенного на оси аппликат в относительных единицах.

На рисунке 1 представлены результаты моделирования пространственно-временного распределения звукового поля, которое фиксируется перемещающимся вдоль трека на фиксированном расстоянии от центра идеальным сканирующим гидрофоном в течение 250  $\mu$ s, прошедших с момента входа пучка в воду. Наблюдается качественное сходство с результатами эксперимента, проведенного на внешнем пучке протонов ускорителя ИТЭФ [3], по детектированию акустического сигнала, генерируемого движущимся в воде пучком протонов энергии 200 МэВ.

На рисунке видны три акустических волны, две из которых вносят существенный вклад в общий звуковой сигнал, регистрируемый на расстояниях порядка длины пробега частицы в среде от источника [3].

Вертикальный «хребет» слева образован горизонтальным «плато» на графике зависимости энергетических потерь протона от длины пройденного пути, когда частица равномерно теряет энергию на треке перед пиком Брэгга. Моделирование данного процесса соответствует генерированию волны цепочкой однородных излучателей, равномерно лежащих на треке частицы. Результат приведен на рисунке 2а. Здесь пространственное распределение акустического поля представлено в направлении положительной полуоси  $y$  (вследствие осевой симметрии отрицательная полуось может быть получена зеркальным отражением положительной). В данном случае имеет место цилиндрическая волна, генерируемая термоакустической антенной в поперечном направлении без учета резкого увеличения потерь энергии в конце пути протона.

Сферическая волна, сформированная узкой областью в окрестности пика Брэгга, изображена на рисунке 1 в виде нижней косой «впадины» и верхнего закругления вертикального «хребта». Данный процесс вносит основной вклад в излучение акустической волны вперед по направлению движения частицы, а также, интерферируя с

цилиндрической волной термоакустической антенны, образует специфическую форму волны, распространяющейся в направлении, перпендикулярном оси пучка.

Моделирование процесса излучения звука протоном, движущимся в воде, с учетом обоих рассмотренных источников, т.е. цепочкой излучателей, равномерно расположенных на треке частицы, с амплитудой давления от отдельного источника, полученной путем численного решения уравнения Бетэ-Блоха, позволяет получить пространственную картину акустического поля в горизонтальной плоскости, проходящей через треки частицы (рис. 2б).

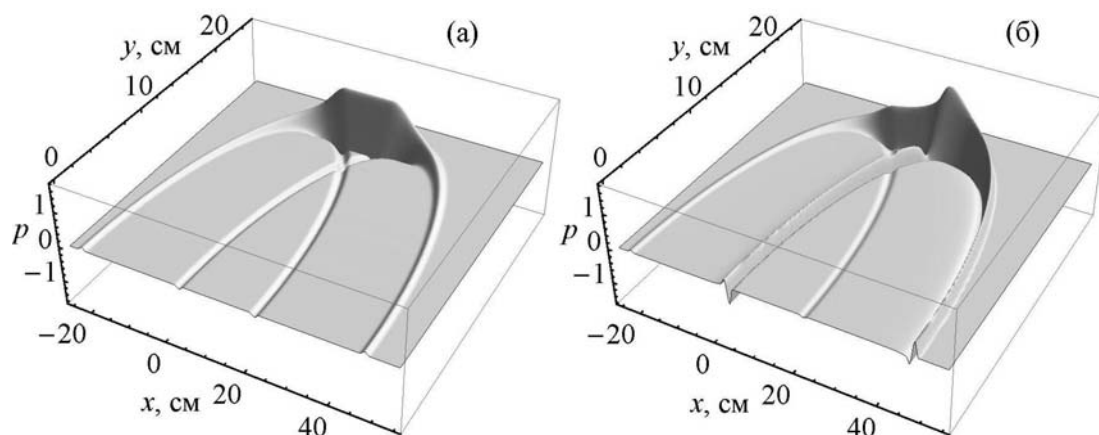


Рис. 2. Модели акустического поля при  $t = 150 \text{ мкс}$ , сгенерированные цепочкой излучателей, равномерно распределенных на треке частицы: а) все источники испускают волны одинаковой амплитуды, б) зависимость амплитуды сигнала каждого излучателя от положения на треке соответствует реальному графику энергетических потерь протона в воде вдоль пройденного частицей пути.

На этом же рисунке заметна небольшая сферическая волна разряжения, генерируемая при входе протона в воду, т. е. на конце термоакустической антенны, противоположном пику Брэгга. На рисунке 1 она соответствует верхней косой «впадине» малой глубины, которая за счет интерференции немного корректирует левый «хребет» напротив начала движения протона.

В итоге для того, чтобы получить наиболее полную информацию об интенсивности и угловом распределении генерируемого пучком протонов ультразвука, необходим учет всех рассмотренных механизмов формирования волн, а также их сравнение для различных энергий и ширины пучка.

#### Список литературы

1. Лямшев Л.М. Радиационная акустика // УФН. – 1992. – Т. 162; № 4. – С. 43–94.
2. Применение ультразвука в медицине: Физические основы. Пер. с англ. / Э. Миллер, К. Хилл, Дж. Бэмбер и др. – М.: Мир, 1989. – 568 с.
3. Albul V.I., Bychkov V.B., Vasil'ev S.S. и др. Acoustic field generated by a beam of protons stopping in a water medium // Acoustical Physics. 2005. Vol. 51, N 1. P. 33-37.

### ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ГЕНЕРАТОР МОЩНЫХ ИОННЫХ ПУЧКОВ ТЕМП-4М ДЛЯ ПУЧКОВО-ПЛАЗМЕННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ

А.И. Пушкарев, Ю.И. Исакова, В.И. Гусельников  
 Национальный исследовательский Томский политехнический университет  
 Россия, 634050, Томск, пр. Ленина 30, E-mail: aipush@mail.ru

*Представлены результаты комплексных исследований параметров импульсного ионного пучка гигаваттной мощности, формируемого диодом с взрывоэмиссионным потенциальным электродом в режиме магнитной самоизоляции. Исследования проведены на ускорителе ТЕМП-4М в режиме формирования двух импульсов – первый отрицательный (300-500 нс, 100-150 кВ) и второй положительный (150 нс, 250-300 кВ). Плотность энергии ионного пучка 0.3-2.5 Дж/см<sup>2</sup> (для разных диодов), состав пучка – протоны и ионы углерода. Ресурс работы диода с магнитной самоизоляцией превышает 10<sup>7</sup> импульсов. Показано, что диоды плоской конфигурации обеспечивают формирование мощного ионного пучка с плотностью энергии 0.3-0.4 Дж/см<sup>2</sup>, общей площадью до 200 см<sup>2</sup>. Диоды с фокусирующей геометрией формируют ионные пучки с плотностью энергии в фокусе до 2-2.5 Дж/см<sup>2</sup> и энергией в импульсе 80-100 Дж. Представлены оригинальные методики и диагностическое оборудование оперативного контроля основных параметров ионного пучка – тепловизионная диагностика полной энергии и распределения плотности энергии ионного пучка по сечению, времяпролетная диагностика состава и энергетического спектра ионного пучка.*

**Введение**

Радиационно-пучковое модифицирование мощными электронными и ионными пучками позволяет получать в поверхностных слоях материалов составы и структуры, недоступные ни одному из традиционных металлургических способов [1]. Воздействие пучков заряженных частиц, инициируя в металлах и сплавах целый ряд физических явлений термического, термомеханического и диффузионного характера, приводит к их структурным и фазовым превращениям. В результате изменяются свойства материалов: твердость, прочность, износостойкость; повышаются эксплуатационные характеристики изделий из них. В настоящее время планарные диоды с взрывоэмиссионным катодом широко используются для генерации широкопертурных импульсных электронных и ионных пучков с плотностью тока выше  $20 \text{ A/cm}^2$ . Несмотря на значительный прогресс в разработке источников мощных ионных пучков, многие процессы в ионном диоде с магнитной самоизоляцией изучены недостаточно. В течение 1973-2000 годов основным направлением применения мощных ионных пучков были исследования по управляемому термоядерному синтезу. Большинство работ было направлено на получение сфокусированных ионных пучков с максимальной плотностью тока и мощностью более  $10^{12}$  Вт. Более подробный обзор работ по генерации мощных ионных пучков представлен в работе [1].

**1. Экспериментальный стенд и диагностическое оборудование**

Исследования проводились на ионном ускорителе ТЕМП-4М [2,3], который состоит из генератора импульсных напряжений, построенного по схеме генератора Аркадьева-Макрса, наносекундного генератора (двойной формирующей линии) и вакуумного диода с магнитной самоизоляцией. Ускоритель ТЕМП-4М формирует сдвоенные разнополярные импульсы – первый отрицательный (300 - 500 нс, 100-150 кВ) и второй положительный (150 нс, 250-300 кВ), частота импульсов 5–10 имп./мин. На Рис. 1 представлена функциональная схема ускорителя.

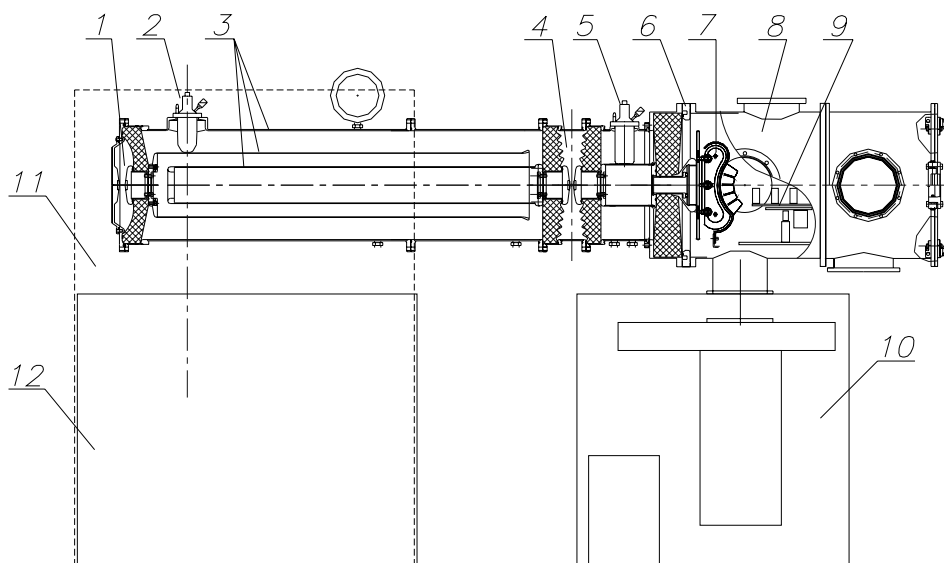


Рис. 1. Схема ускорителя: 1, 4 – газовые разрядники; 2, 5 – делители напряжения; 3 – ДФЛ; 6 – пояс Роговского; 7 – магнитоизолированный диод; 8 – вакуумная камера; 9 – мишенный узел; 10 – вакуумная система; 11- генератор импульсных напряжений (ГИН); 12 – система газоподачи и водоподготовки.

Для генерации ионного пучка в ускорителе ТЕМП-4М мы использовали диод с магнитной самоизоляцией электронов. Основная часть исследований выполнена на плоском полосковом диоде размером  $22 \text{ см} \times 4.5 \text{ см}$ . Зазор между потенциальным и заземленным электродами выбирался из условия согласования импеданса диода с волновым сопротивлением двойной формирующей линии и составлял 7-10 мм. Потенциальный электрод изготовлен из графита, заземленный электрод – из нержавеющей стали с прорезями  $0.4 \text{ см} \times 5 \text{ см}$ , прозрачность 60%. Блок-схема диодного узла, схема измерения полного тока и плотности ионного тока в плоском полосковом диоде показаны на Рис. 2.

На Рис. 3 приведены типичные осциллограммы, характеризующие работу диодного узла ускорителя ТЕМП-4М.

Полосковый диод с магнитной самоизоляцией эффективно работал при давлении 0.1 Па с ресурсом более  $10^7$  импульсов (ресурс диодного узла более 10 лет). Плотность энергии ионного пучка составляла  $0.3-0.4 \text{ Дж/см}^2$ . Частота генерации импульсов ограничивалась только тепловым режимом диода.

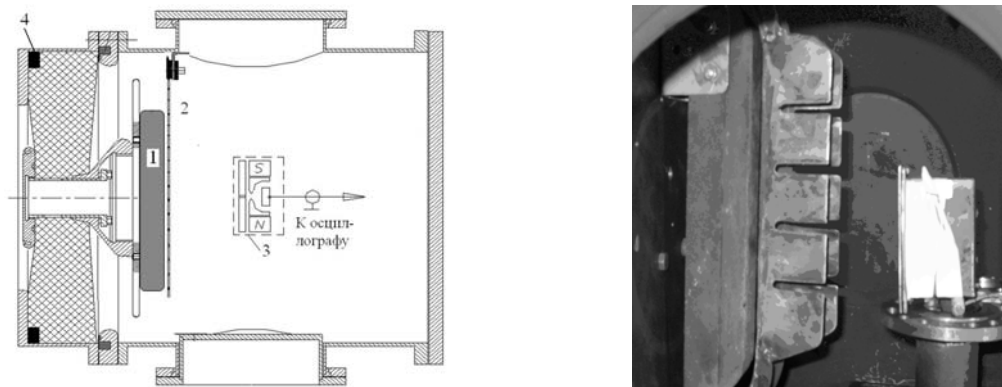


Рис. 2. Схема диодного узла и фотография плоского полоскового диода: потенциальный электрод диода (1), заземленный электрод (2), коллимированный цилиндр Фарадея (3), пояс Роговского (4)

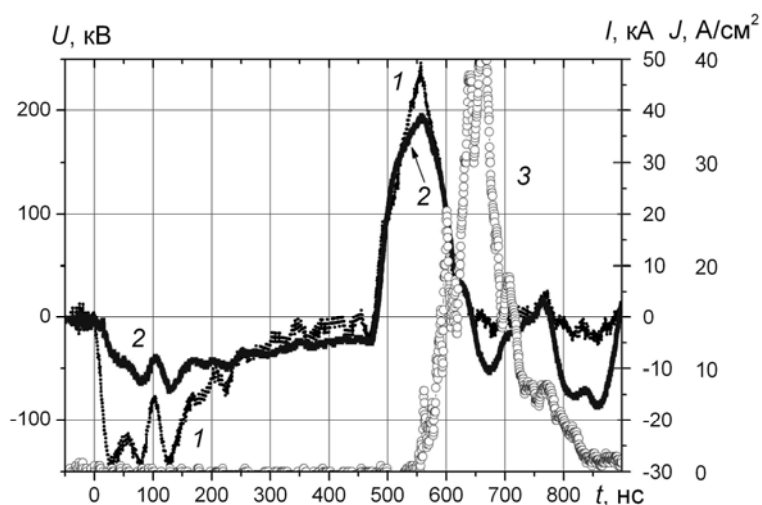


Рис. 3. Осциллограммы: 1) ускоряющего напряжения, 2) полного тока, 3) плотности ионного тока плоского диода с самоизоляцией. Зазор 8 мм, расстояние до КЦФ 18 см

## 2. Измерение состава и энергетического спектра ионного пучка времяпролетным методом высокого разрешения

Ионный состав МИП и энергетический спектр ионов определяют глубину модифицированного слоя обрабатываемого изделия и величину удельного энерговыделения. Поэтому в процессе оптимизации режима обработки изделия важно контролировать состав и количественное соотношение ионов в пучке. Для анализа состава ионного пучка, формируемого диодом, мы использовали явление пространственного разделения разных ионов по пути движения от диода до регистрирующего устройства – КЦФ. При ускорении в анод-катодном зазоре диода ионы разной массы и степени ионизации приобретают одинаковую энергию, но разную скорость. При этом предполагаем, что в диоде ионы разных типов формируются синхронно в течение импульса ускоряющего напряжения, и на пути дрейфа их скорость не меняется. Плотность ионного пучка, формируемого ускорителем ТЕМП-4М, не превышает  $2 \cdot 10^{13} \text{ см}^{-2}$ , поэтому вероятность их столкновения (и изменения скорости) в пространстве дрейфа низка. Для каждого момента времени генерации ионного пучка по величине напряжения, приложенному к диоду (шаг 0.4 нс), рассчитывали плотность тока определенного типа ионов и величину задержки прихода этих ионов к КЦФ. Расчетные кривые сопоставляли с экспериментальными данными [4]. С увеличением расстояния от диода до КЦФ задержка ионного тока относительно ускоряющего напряжения увеличивается. При этом экспериментальные значения плотности ионного тока и расчетные также хорошо совпадают. Отсутствие изменения состава пучка, формируемого плоским диодом, в процессе транспортировки подтверждает корректность использования разработанной методики для диагностики МИП, формируемой ускорителем ТЕМП-4М.

Разработанная методика позволяет оперативно контролировать спектр отдельно для каждого типа ионов. В этом случае для каждого значения ускоряющего напряжения, регистрируемого осциллографом (шаг 0.4 нс), рассчитываем временную задержку и строим кривую изменения кинетической энергии определенного типа ионов, синхронную с осциллограммой сигнала с КЦФ. Полученные данные позволяют определить распределение ионов по энергии. Энергетические спектры ионов, формируемые плоским и фокусирующим диодами, приведены на Рис. 4.

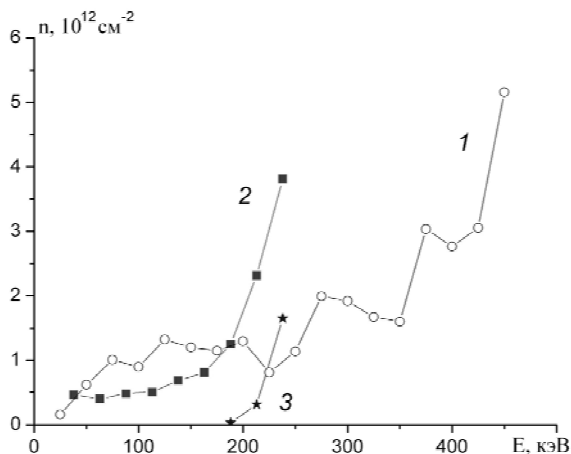


Рис. 4. Спектры плотности ионов  $C^{2+}$ , формируемых фокусирующим диодом (1), ионов  $C^+$  (2) и протонов (3), формируемых плоским диодом.

Разработанная методика оперативной диагностики параметров импульсного ионного пучка позволяет определить основные характеристики МИП сложного состава: состав пучка и абсолютные значения суммарной плотности ионов и плотности ионов разной массы и кратности ионизации, энергетический спектр каждого типа ионов. При контроле параметров МИП не требуется сложное оборудование и длительная обработка результатов измерений. Методика успешно апробирована на ионном ускорителе ТЕМП-4М, формирующем МИП сложного состава мощностью 6-8 ГВт с плотностью до  $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ .

### 3. Тепловизионная диагностика мощных ионных пучков

Тепловизионная диагностика параметров импульсных ионных пучков [5] гигаватной мощности является эффективным методом оперативного контроля. Она позволяет измерять полную энергию МИП и распределение плотности энергии на мишени, оптимизировать работу ионного диода и контролировать режим облучения мишени. Пространственное разрешение составляет 0.9-1 мм, чувствительность типового тепловизора обеспечивает регистрацию теплового отпечатка за один импульс при плотности энергии выше  $0.02 \text{ Дж/см}^2$ . Диагностика параметров МИП проводилась по тепловому отпечатку на мишени с использованием тепловизора Fluke TiR10. В качестве мишени мы использовали латунную пластинку толщиной 100 или 220 мкм [6]. На Рис. 5 приведены результаты измерения распределения плотности энергии по сечению МИП в плоском полосковом диоде при А-К зазоре 8 мм (начало диода) и 10 мм (конец диода). Мишень из латуни толщиной 100 мкм, расстояние от диода до мишени 40 мм. Аналогичные эксперименты были проведены с диодом фокусирующей конструкции. На Рис. 6 приведен типичный тепловой отпечаток МИП фокусирующего полоскового диода. Расстояние диод-мишень 14 см.

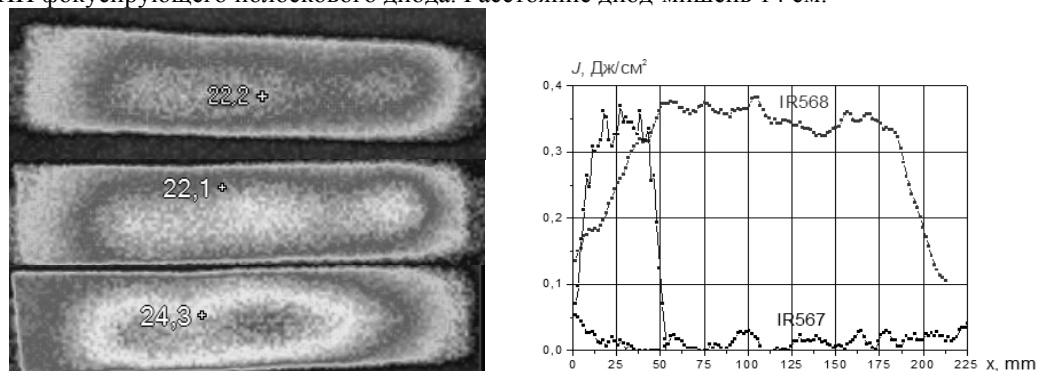


Рис. 5. Тепловой отпечаток и распределение плотности энергии на мишени в продольном (1) и поперечном сечении (2).

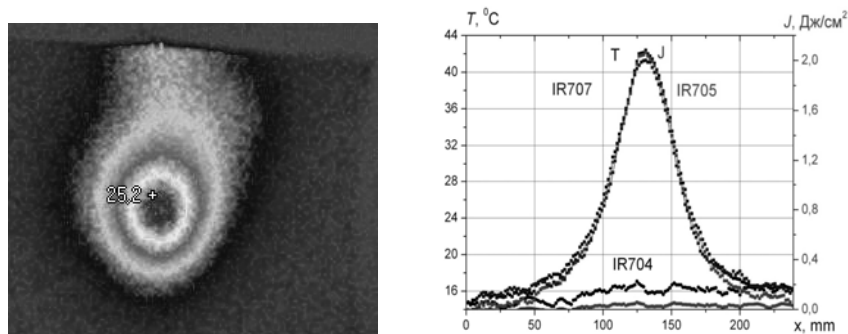


Рис. 6. Тепловой отпечаток МИП на выходе фокусирующего полоскового диода, распределение температуры и плотности энергии сфокусированного МИП

Ширина теплового отпечатка на полувысоте (в горизонтальном направлении) близка к ширине полоскового диода (45 мм), что указывает на малое расхождение МИП.

Эффективность генерации ионного пучка в диодах различной конструкции является важнейшим параметром, определяющим перспективность диода данного типа и данной конструкции. На Рис. 7 показана зависимость полной энергии ионного пучка от энергии, поступающей от наносекундного генератора.

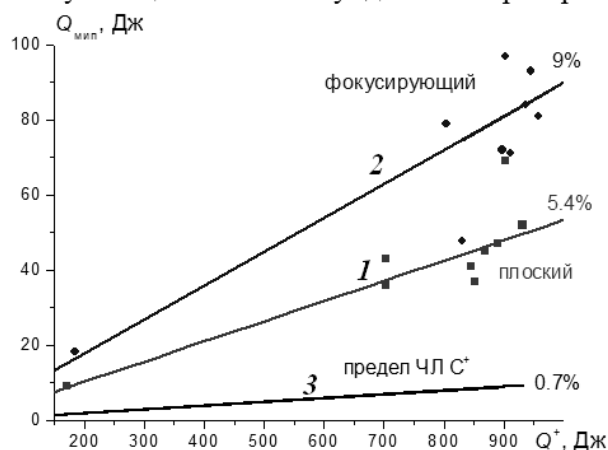


Рис. 7. Зависимость энергии МИП от энергии, подводимой к диоду в течение генерации ионного пучка (точки). Кривая 1 – эффективность генерации 5.4%, кривая 3 – предельная эффективность генерации ионов  $C^+$  в режиме ограничения объемным зарядом (0.7%).

Полную энергию ионного пучка рассчитывали интегрированием распределения плотности энергии МИП по сечению. Энергию, поступающую от наносекундного генератора в диод, рассчитывали по ВАХ диода. Эффективность генерации ионного пучка в плоском полосковом диоде с учетом прозрачности заземленного электрода составляет 9%.

#### **Заключение.**

Генератор импульсных ионных пучков гигаватной мощности ТЕМП-4М является прототипом технологической установки, обеспечивающей большой ресурс работы, широкий диапазон регулирования параметров ионного пучка. Ускоритель ТЕМП-4М оснащен диагностическим оборудованием, обеспечивающим оперативный контроль основных параметров МИП – состав и энергетический спектр ионного пучка, распределение плотности энергии по сечению и полную энергию пучка. Ионный диод с магнитной самоизоляцией является удобным инструментом для исследования процессов генерации мощных ионных пучков. Динамику взрывоэмиссионной плазмы можно контролировать по ВАХ диода, а процесс генерации ионов – по плотности ионного тока. В обоих независимых диагностиках используется измерение ВАХ, что обеспечивает очень высокое временное разрешение.

#### **Литература**

1. Быстрицкий В.М., Диденко А.Н. Мощные ионные пучки. - М.: Эннергоатомиздат, 1984.-152 с.
2. G. E. Remnev, I. F. Isakov, A. I. Pushkarev, et al., "High Intensity Pulsed Ion Beam Sources and Their Industrial Applications // Surf. and Coatings Technol., vol. 114, pp. 206–212, 1999.
3. Патент 86374 Россия. МПК8 H05H 9/00. Импульсный ионный ускоритель / А.И. Пушкарев, В.А. Тарбоков, Р.В. Сазонов. Заявлено 27.04.2009; Оpubл. 27.08.2009, Бюл. № 24. – 6 с.
4. Исакова Ю.И., Пушкарев А.И., Тарбоков В.А. Измерение состава и энергетического спектра импульсного ионного пучка времяпролетным методом высокого разрешения // Известия Томского политехнического университета. – 2010. – Т. 316. – № 2, с. 76–79.
5. H. A. Davis, R. R. Bartsch, J. C. Olson, D. J. Rej, and W. J. Waganaar. J. Appl. Phys. **82** (7), 3223 (1997).
6. Исакова Ю.И., Вахрушев Д.В., Холодная Г.Е. Тепловизионная диагностика параметров мощных ионных пучков // Современные техника и технологии: Сборник трудов XVIII Международной научно-практической конференции студентов, аспирантов и молодых учёных - Томск. - 18-22 апреля 2011. - Томск: ТПУ. - 2011 - Т. 1. - с. 192-193.

## **ФИЗИКА И ТЕХНОЛОГИЯ ПОЛУЧЕНИЯ I-125 В ПЕТЛЕВОМ УСТРОЙСТВЕ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ЯДЕРНОГО РЕАКТОРА**

В.В. Зукав, Г.Г. Глухов

Физико-технический институт ФГБОУ ВПО НИ ТПУ, Россия, г. Томск

### **Введение**

Среди изотопов йода, йод-125, йод-131 и йод-132 нашли широкое применение медицине, в частности в диагностике и лечении[1]. П. Харпер и Д. Уоррен, и другие авторы [2,3,4,5] утверждают, что использование йода-125 для медицинских целей, является более выгодным по сравнению с йодом-131 и йодом-132. Эти преимущества



вытекают из следующих свойств йод-125. Период полураспада йода-125 составляет 60 суток. Он распадается за счет К-захвата с испусканием низкоэнергетических гамма-квантов (28-33 КэВ). Такие гамма-кванты имеют малую длину пробега в ткани пациента, поэтому радиационное поражение тканей локализуется непосредственно вокруг ампулы с этим фармпрепаратом. Для лечения больных используют несколько сотен очень тонких ампул (диаметр порядка 1 мм) из нержавеющей стали, титана и т.п. Внутри них наносят йод-125 с суммарной активностью йода во всех ампулах около 300 мКи. Затем эти ампулы хирургическим путем вводят в опухоль пациента. При использовании йода-125 в целом дозная нагрузка на пациентов не велика из-за низкой энергии испускаемых гамма-квантов (28-33КэВ). У всех остальных радиоизотопов йода испускаются гамма-кванты значительно более высоких энергий.

#### Обзор способов получения йода-125

Общая характеристика свойств йода[6]: йод, химический элемент VII гр. периодической системы, относится к галогенам, атомный номер 53, атомная масса 126,9045. В природе встречается только один стабильный изотоп  $^{127}\text{I}$ . Остальные изотопы получены искусственно и в силу своей нестабильности, радиоактивны и это свойство широко используется в научных исследованиях и медицине.

Атом йода является чрезвычайно реакционно-способной частицей, но в меньшей степени, чем остальные галогены и в свободном состоянии длительное время существовать не может. Все галогены в любом агрегатном состоянии находятся в виде двух атомных молекул. Среди простых молекул, йод имеет самый большой радиус иона 0.22 мм и самую высокую поляризуемость 9.6, в результате чего легко сорбируется на различных поверхностях межмолекулярными силами.

Йод хорошо растворим в большинстве органических растворителей, например, в четыреххлористом углероде 19.2 г/кг, бензоле 164.0 г/кг, эталоне 271.7 г/кг. Его растворимость в воде много ниже 0.34 г, но сильно увеличивается в присутствии йодидов металлов и в растворах он частично гидролизован:



Одинарная связь между атомом йода в молекулах не так прочна, как, например двойная между атомами кислорода и тройная между атомами азота. Поэтому в отличие от кислорода и азота, легко реагирует со многими веществами даже при низких температурах.

#### Получение радиоизотопа йода-125 на ускорителе

Йод-125 может быть получен при бомбардировке природного теллура дейтронами с энергией 15 МэВ[7] в соответствии с реакцией:



или при облучении протонами с энергией 22 МэВ диоксида теллура, обогащенного до 88%  $^{125}\text{Te}$ [8] в соответствии с реакцией:



Йод-125 также можно получить под действием потока  $\alpha$ -частиц с энергией 20 МэВ на сурьму обогащенной  $^{123}\text{Sb}$ [9]:



Йод-125, полученный такими методами, сильно загрязнен другими радиоактивными изотопами йода, такими как йод-124 ( $T_{1/2}=4.5$  дня), или йод-126 ( $T_{1/2}=13$  дней), что влияет на качество препарата.

#### Получение радиоизотопа йода-125 на реакторе

Методы получения йода-125 при помощи ускорителя большого распространения не получили из-за малого выхода продукта и его загрязненности другими радиоизотопами. Основной путь - цепочка ядерных реакций:



По Канадскому методу облученный ксенон, в контейнере под давлением, после 10-недельной выдержки, охлаждают сухим льдом в спирте и отгоняют ксенон. Затем контейнер охлаждают жидким азотом и заливают 0,02л. раствор сульфата натрия с РН=9-10 и нагревают до комнатной температуры. Йод со стенок переходит в раствор, который затем пропускают через катионит для очистки.

В США йод вымывают из контейнера 0,1%. раствором едкого натрия и подвергают очистке дистилляцией из раствора серной кислоты, собирая продукт в раствор сульфата. Препарат содержит менее 1%  $^{126}\text{I}$  и менее 0,1% других примесей [10].

Существует и другой вариант. Ксенон облучают в сжиженном состоянии в бомбе из циркалоя-2 содержащей 16г ксенона. После облучения ее выдерживают несколько дней для накопления йода-125. Затем сосуд охлаждают жидким азотом, открывают вентиль и, нагревая в смеси азота с сухим льдом, удаляют ксенон. Йод со стенок бомбы вымывают 0,1% раствором гидросульфата натрия с РН=7-8. Небольшую примесь  $^{137}\text{Cs}$  удаляют на колонке с катионитом дауэкс-50. Очищенный продукт содержит около 2%  $^{126}\text{I}$  [11].

По своей сути все эти три способа одинаковы и различаются в деталях.

Были предприняты попытки использовать для получения йода-125 реакторную петлю. Суть ее в том, что йод-125 получается при активации природного ксенона в газовой петле реактора. Облученный ксенон поступает в контейнеры высокого давления, в которых вымораживается жидким азотом. Для выделения йода-125 используется дистилляция. Выход процесса активации ксенона и образования йода-125 невелик, но чистота продукта составляет более 99% [12]. Позднее на этот способ был получен патент.

С открытием первого химического соединения ксенона в 1962 г., химия благородных газов получила большое развитие. Некоторые соединения ксенона производятся и используются в промышленности.

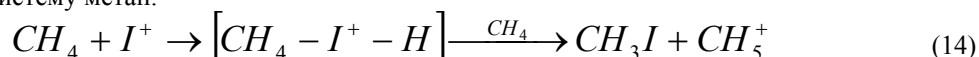
С целью получения йода-125, были исследованы возможности облучения твердых фторидов ксенона в ядерном реакторе, в частности дифторида ксенона. Содержание ксенона в нем составляет 77,5%, что в 600 раз больше газообразного такого же объема.

Работа с твердыми веществами удобнее, чем использование для облучения повышенного давления и больших объемов газа.

### Предлагаемый метод получения йода-125

Как было описано выше йод-125 получают путем облучения изотопа ксенона в потоке тепловых нейтронов по реакции (13).

Облучение проводят в контейнерах и образующийся йод активно сорбируется стенками установки и подвергается вторичному облучению с образованием йода-126. Мы предлагаем использовать петлевой вариант с выводом образующегося йода-125 из зоны облучения. Для предотвращения сорбции йода-125 на стенках установки было принято решение ввести в систему метан.



Образующиеся продукты обладают гораздо меньшей способностью сорбироваться стенками установки.

В настоящее время полагают, что при процессе электронного захвата (и при изомерном переходе, физически сходном с электронным захватом) возникшие атомы йода вступают в рекомбинационные реакции с радикалами, получившимися под действием электронов Оже. В результате процесса нейтрализации первичных ионов  $^{125}I^+$  атомы возбуждены и, поскольку они изоэлектронны метиленовым радикалам, то способны, как и последние, вступать в реакции внедрения по связи С-Н, приводя к образованию алкилйодидов.

Во всех работах, которые были выполнены ранее, исследования проводились в статических условиях. В них показано, что в смеси  $He^{125} + CH_4$  протекают химические реакции между электрон-новозбужденными ядрами йода и метаном. Реакция между стабильным йодом и метаном является эндотермической реакцией и в обычных условиях не протекает. При распаде  $^{125}Xe$  в смеси образуются органические продукты, йодистый метил и примесь йодистого этила, выход которых составляет до 80 %.

### Описание экспериментальной установки

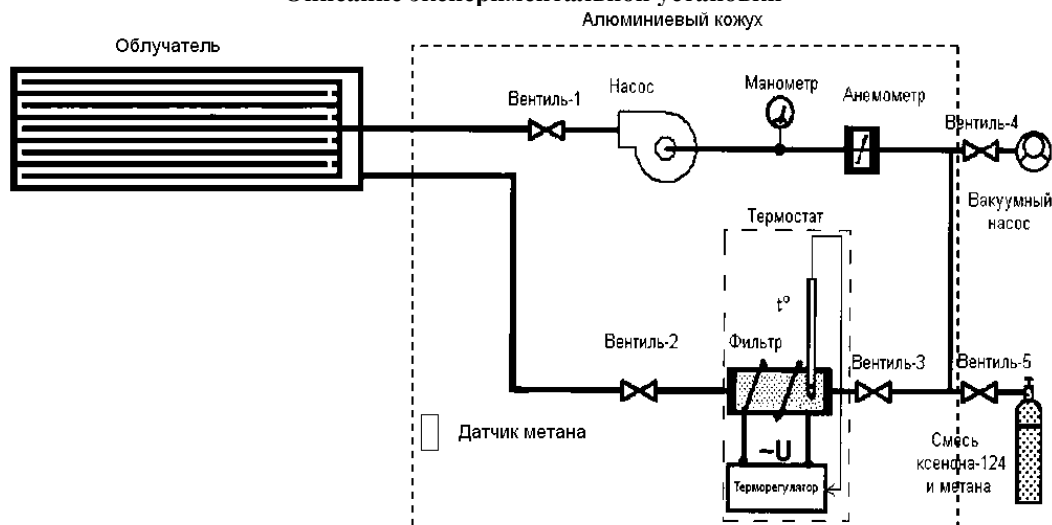


Рисунок 19 - схема экспериментальной установки

Установка состоит из трех основных узлов: облучательного устройства, состоящего из набора коаксиально расположенных алюминиевых труб, насоса для прокачки газа через облучаемое устройство, а также фильтра для улавливания йодпроизводных продуктов. Все эти узлы соединены в замкнутый контур, который заполняется газовой смесью, состоящей из ксенона обогащенного изотопом  $^{124}Xe$  и метана.

Йод, образующийся при распаде  $^{125}Xe$ , соединяется с метаном, тем самым предотвращается сорбция йода стенками установки. Облученный газ с небольшой скоростью проходит через фильтр, который заполнен гранулированной окисью алюминия, пропитанного нитратом серебра.

Йодпроизводные продукты поглощаются данным сорбентом и выводятся из газовой смеси. В результате резко снижается вероятность протекания вторичной реакции  $^{125}I(n,\gamma)^{126}I$ . Данный изотоп является не желательной примесью в конечном продукте.

Предварительные результаты расчета динамики накопления йода-125 (рис. 2) показали что при облучении газообразного ксенона в реакторной петле с плотностью потока  $6 \cdot 10^{12} \text{ см}^{-2} \cdot \text{с}^{-1}$  в течении 100 часов, активность йода-125 может достигать 700 мКи при 2.7% обогащении  $^{124}Xe$ , а отношение активности йода-125 на фильтре к активности остальных изотопов около  $5 \cdot 10^5$  раз (рис. 3)

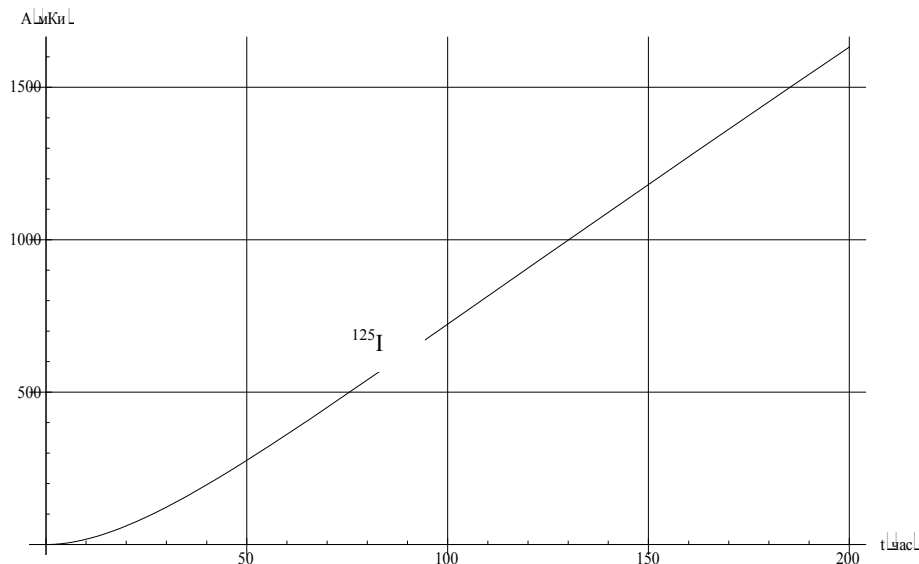


Рисунок 2

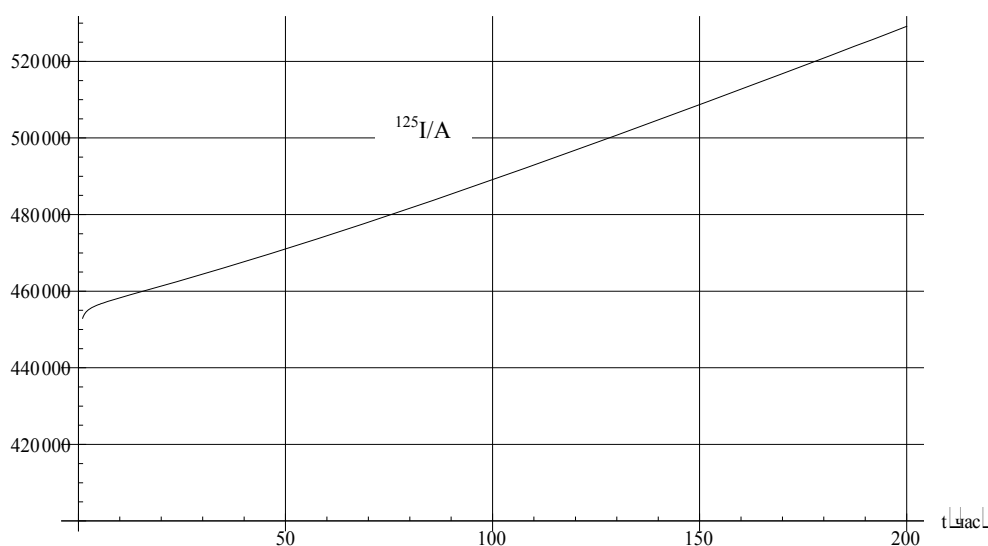


Рисунок 3

### Заключение

Предложен метод получения изотопа йода-125 непрерывным способом в реакторной петле на исследовательском реакторе ИРТ-Т.

Результаты расчетов показывают перспективность данного метода получения изотопа йода-125.

### Список литературы

1. Вестник «Атомпром», № 2, февраль 2008 г., стр. 18-21.
2. P. V. Harper, M. D. Warren and others: J. Nukl. Med. 4, 277-289 (1963).
3. P. V. Harper, W. D. Siemens and others: Production and Use of Iodine-125 USA AEC, ACRCH-15, 76 (1961).
4. M. B. Porath, A. Hochman, J. Gross: J. Nukl. Med. 7, 88-98 (1966).
5. H. Endlich and others: Am. J. Roent. Rad. Ther. and Nukl. Med. 87, 148 (1962).
6. В.И. Ксензенко, Д.С. Стасиневич. Химия и технология брома, йода и их соединений «Химия». М.1995 г.
7. H. Papas, W. Coreyell: Phys. Rev. 78, 822 (1950).
8. F. L. Green, J. A. Martin: Nuclear Sci. and Eng. 7, 387-391 (1960).
9. G. Marquez, P. Perlman: Phys. Rev, 78, 189 (1950).
10. «Techn. Repts Ser. Jnt. Atom. Energy Agency», 1971 г, № 128, 227-236.
11. В.И. Левин. Получение радиоактивных изотопов. М. Атомиздат 1972 г.
12. Kulesza Albin, Lada Witold i inni «Nukleonika», 1971, 16, № 11-12, 565-571

Г. Е. Ремнев, И. С. Егоров, М. И. Кайканов, Г. Г. Канаев, Е. И. Луконин, А. В. Нашилевский, А. В. Степанов  
НИ ТПУ, г. Томск, Российская Федерация

## Введение

Радиационные технологии находят всё более широкое практическое приложение в современной промышленности и медицине – от получения нанопорошков [1] и радиационного отвержения лаковых покрытий [2] до очистки сточных вод [3] и радиационной стерилизации объектов медицинского, фармакологического назначения, продуктов питания, питьевой воды [4]. Применение ионизирующих излучений зачастую оказывается эффективнее и экологически безопаснее традиционных технологий, кроме того, некоторые эффекты невозможно достичь иным, кроме как радиационным способом [5].

В качестве источника излучения могут применяться как радиоактивные изотопы, так и ускорители электронов. Основные преимущества ускорителей электронов перед радиоизотопными источниками: несопоставимо большая мощность электронного пучка в импульсе, высокая направленность излучения, полная безопасность ускорителя в выключенном состоянии.

Современное развитие ускорительной техники позволяет создавать ускорители удовлетворяющие большинству требований к промышленному оборудованию. Конкурентоспособность промышленного ускорителя напрямую зависит от его надежности, удобства в эксплуатации, интерфейса между оператором и системой управления технологическим процессом. Стабильность параметров, таких как энергия электронов и ток пучка, равномерность дозы облучения под выводным окном ускорителя, должны обеспечивать высокое качество обработки изделий. [6]. Немаловажным фактором являются также габаритные размеры ускорителя. В работах [7, 8, 9] представлено описание ускорителей электронов, ориентированных на использование, как в научных, так и в промышленных целях. В последние годы наблюдается ежегодное увеличение числа продаваемых ускорителей для технологических целей.

Основными факторами, ограничивающими промышленное применение импульсных ускорителей электронов, являются: относительно невысокая надёжность и малый ресурс работы отдельных узлов ускорителя: конденсаторной батареи, высоковольтного коммутирующего устройства, выводного окна ускорителя. Коммутирующее устройство в ускорителях, как правило, выполняется на основе газовых разрядников, которые ограничивают частоту следования импульса и ресурс ускорителя. В работе [4, 7, 8] использована схема ускорителя на основе твердотельного полупроводникового размыкателя.

Перечисленные факторы были учтены при проектировании ускорителя АСТРА, представленного в докладе, что позволило обеспечить длительный режим работы ускорителя при частоте повторения импульсов до 50 имп./с.

## Конструкция ускорителя.

Ускоритель выполнен в виде двух конструктивно разделённых блоков, внешний вид которых показан на рис. 1.

1.

В состав блока ускорителя (БУ) (рис. 1, а) входят: генератор высоковольтных импульсов (ГВИ), вакуумный электронный диод с «взрывоэмиссионным катодом», система управления коммутатором, система откачки диодной камеры, система циркуляции и регенерации трансформаторного масла, система охлаждения выводного окна и органы управления перечисленными системами. Система электропитания и управления ГВИ расположена отдельным блоком (рис. 1, б). Функциональный состав ускорителя и взаимодействие его элементов представлены в виде блок-схемы на рис. 2, а. Емкостный накопитель, коммутатор и трансформатор являются элементами ГВИ и, совместно с вакуумным электронным диодом, входят в состав высоковольтной части ускорителя. Корпус высоковольтной части ускорителя цилиндрической формы (рис. 1, а) имеет габариты  $\varnothing 0,5 \times 1$  м. Относительно небольшие размеры всей установки позволяют разместить и обслуживать ускоритель в помещении размерами 3x4 м.

Компактность ускорителя АСТРА достигнута благодаря использованию высоковольтного импульсного генератора, описанного в работе [10]. Принципиальная электрическая схема генератора приведена на рис. 3.



Рис. 1. Внешний вид блоков ускорителя АСТРА.

Управление генератора осуществляется двумя сигналами. Первый сигнал поступает на тиристорный коммутатор *VT1* от

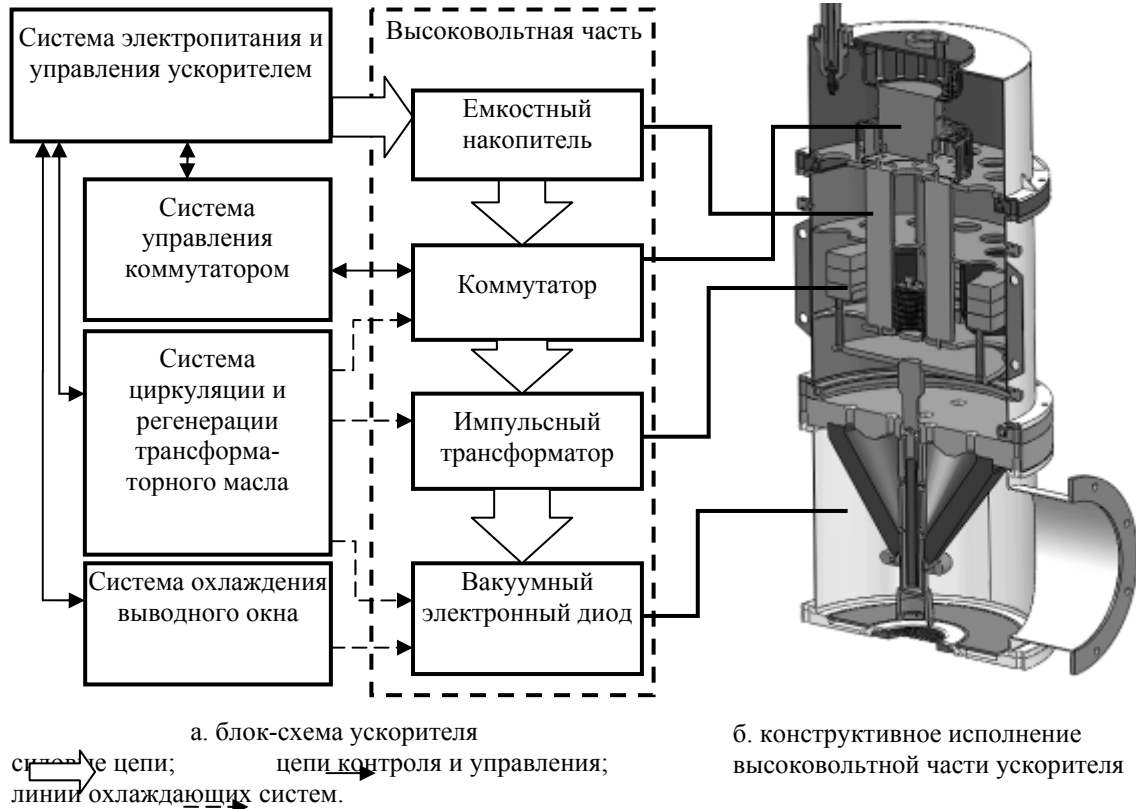


Рис. 2. Устройство ускорителя Астра

внешнего генератора импульсов ГИ, а второй формируется схемой управления СУ и запускает высоковольтный коммутатор *VT2*. Начальные условия для штатного режима работы ГВИ следующие: накопитель *C1* заряжен до задаваемого уровня напряжения, энергия в остальных элементах отсутствует. При отпирании *VT1* в контуре *C1, T1, C2, T2* возникают свободные колебания с круговой частотой:

$$\omega = 1 / \sqrt{(L_p \cdot C_{\Sigma})}, \quad (1)$$

где  $L_p$  – индуктивность рассеяния трансформатора *T1*;

$$C_{\Sigma} = (C1 \cdot C2^{A^2}) / (C1 + C2^{A^2});$$

$$C2^{A^2} = C2 \cdot k_T^2;$$

$k_T$  – коэффициент трансформации трансформатора *T1*.

При  $C1=C2'$ , накопитель *C1* полностью разряжается за время  $t=T/2=\pi/\omega$ , соответственно *C2* за это же время заряжается до максимального напряжения, сердечник *T2* перемагничивается до  $-B_s$ . Синусоидальный ток в контуре *C1, Lp, C2* становится равным нулю. Если в этот момент открыть *VT2*, энергия из *C2* через автотрансформатор *T2* выделится в нагрузку. На этом рабочий цикл закончится. При практической реализации схемы вводят небольшое рассогласование  $C1 < C2'$ , которое позволяет после окончания цикла передачи энергии иметь небольшое отрицательное остаточное напряжение на *C1*, необходимое для запираия *VT1* и восстановления его вентильных свойств.

В качестве высоковольтного коммутатора *VT2* использован тиратрон с холодным катодом типа ТДИ или псевдоискровой разрядник (Pseudospark switch). По сравнению с традиционными искровыми разрядниками высокого давления, псевдоискровой коммутатор имеет ряд преимуществ: более высокую долговечность, более широкий диапазон рабочих напряжений, высокую стабильность коммутируемого напряжения в широком диапазоне рабочих температур. Управление таким тиратроном осуществляется достаточно мощными импульсами отрицательной полярности: 2÷6 кВ, 80÷100 А при крутизне не менее 5 кВ/мкс. Разработанная нами электрическая схема обеспечивает формирование управляющих импульсов поджига тиратрона с указанными параметрами в автоматическом режиме. Это означает, что для работы генератора ускоряющих импульсов достаточно одного тактового импульса - запуска тиристорного коммутатора *VT1*.

При указанной на схеме фазировке *T3, T4* зарядка *C3* и *C2* происходит синфазно. Отрицательный импульс на выходе *T4* ограничивается варистором *R1* и отсекается от управляющей сетки *VT3* диодом *VD3*. В момент перехода синусоидального зарядного тока через ноль, напряжения на *C2* и *C3* достигают максимума, на выходе пик-трансформатора формируется импульс положительной полярности, происходит отпирание *VT3* и к поджигающему электроду *VT2* прикладывается отрицательное напряжение. Крутизна фронта поджигающего напряжения ограничена только паразитной емкостью сетка-земля *VT3* и коммутационными свойствами тиратрона *VT3*. Источник накаливаемых

напряжений ИНН имеет 2 выхода для питания подогревателя тиратрона  $VT3$  (6,3 В, 5 А) и генератора водорода  $VT2$  (от 3 до 5 В).

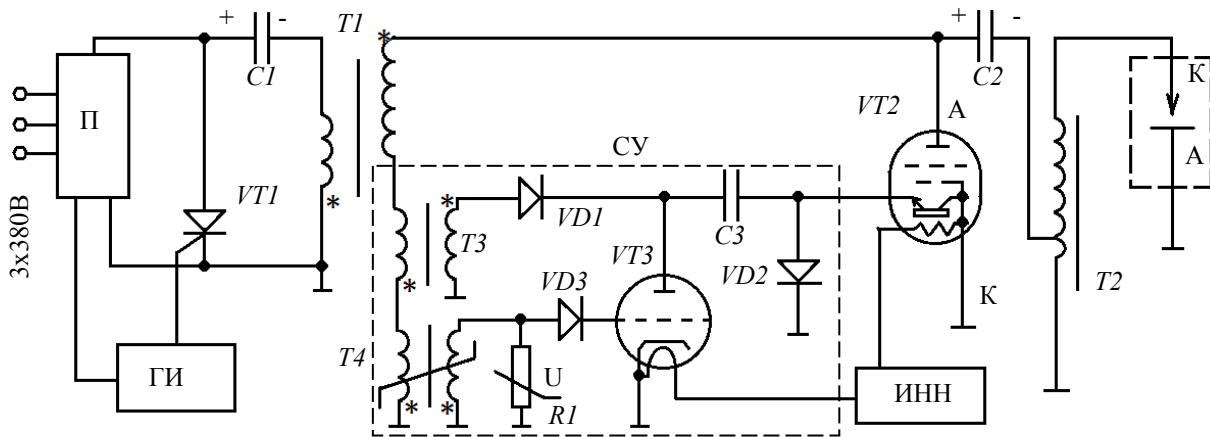


Рис. 3. Принципиальная электрическая схема ускорителя АСТРА.

П - преобразователь напряжения; ГИ - генератор импульсов;  $C1$  - первичный накопитель;  $VT1$  - тиристорный коммутатор;  $T1$  - повышающий импульсный трансформатор;  $C2$  - высоковольтный накопитель;  $VT2$  - коммутатор;  $T2$  - высоковольтный импульсный трансформатор; К-А - ускоряющий промежуток;  $T3$  - импульсный трансформатор тока;  $C3$  - конденсатор;  $VT3$  - маломощный импульсный тиратрон с термокатодом;  $T4$  - пик-трансформатор;  $R1$  - варистор; ИНН - источник накальных напряжений;  $VD1, VD2, VD3$  - диоды.

В процессе эксплуатации ускорителя контролируются следующие электрические параметры:

1. Напряжение накопителя  $C1$   $U_{ст}$  задается и контролируется преобразователем напряжения П в диапазоне 1,5 – 1,95 кВ;
2. Напряжение накопителя  $C2$   $U_{зар}$  с омического делителя напряжения (рис 4);
3. Форма и амплитуда ускоряющего напряжения катод-анодного промежутка  $U_{acc}$  контролируется по осциллограммам сигнала полученного с ёмкостного делителя напряжения, расположенного на выходе ИТ в непосредственной близости от вакуумного диода  $K=6050$  (рис 5);
4. Полный ток диода  $I_g$  определялся из осциллограмм сигналов с пояса Роговского встроенного в вакуумный диод  $K=0,2$  кА/В (рис 5);
5. Выведенный ток электронов  $I_b$  контролировался по осциллограммам сигнала полученного с цилиндра Фарадея (ЦФ)  $R_{ш} = 0,05$  Ом (рис 5). Калибровка диагностического оборудования производилась при использовании жидкостного резистора в качестве нагрузки генератора. Характерные осциллограммы  $I_g$  и  $U_{acc}$  для этого режима приведены на рис. 5. Было определено, что при электрическом сопротивлении нагрузки, близком к выходному импедансу генератора (160 Ом) за один импульс в жидкостном резисторе выделяется 38 Дж. Длительность на полувысоте выходного напряжения генератора при работе на активную нагрузку составляет приблизительно 200нс.



Рис. 4. Характерная осциллограмма  $U_{зар}$  емкостного накопителя  $C2$

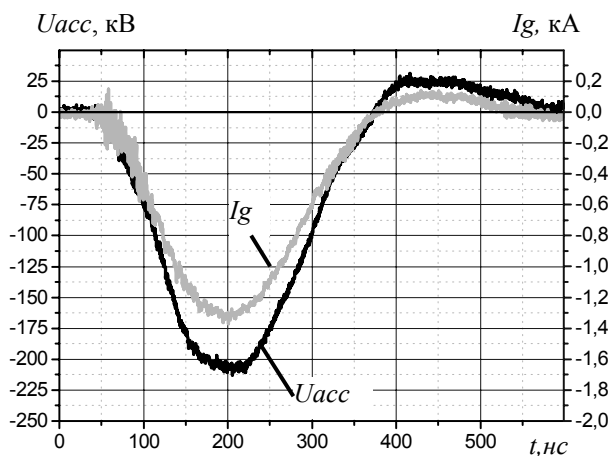


Рис. 5. Характерные осциллограммы  $U_{acc}$  и  $I_g$  при  $Z_n=155$  Ом.

**Генерация пучка электронов в режиме одиночных импульсов**

Настройка вакуумного диода и экспериментальные исследования его характеристик производились в режиме одиночных импульсов. На рис. 6 приведена схема экспериментов с указанием основных размеров и расположения импульсных датчиков тока и напряжения.

Получены данные токов пучка и ускоряющих напряжений для нескольких значений катод-анодного промежутка  $d$ . Анодом является решетка с шестигранной ячейкой оптической прозрачностью >90%. Материал анода - сталь марки 12Х18Н10Т. Для герметизации вакуумного объема и вывода пучка электронов в область использования применялась Ti фольга толщиной 25 и 50 мкм.

Многоострый катоды широко применяются в импульсных источниках сильноточных электронных пучков. Такие катоды имеют достаточно простую конструкцию и высокий ресурс работы [11]. Работа многоострийного катода характеризуется малым временем образования плазмы, после чего катод переходит в режим ограничения диодного тока объемным зарядом. В этом режиме ток через диод корректно описывается законом Чайлда-Ленгмюра [12]:

$$I_{Ch-L} = AU^{3/2} \frac{S_0}{d^2} F \quad (2)$$

где  $A = 2,33 \mu A/U^{3/2}$ ,  $U$  - напряжение, приложенное к диоду,  $S_0$  - площадь катода,  $d$  - зазор катод-анод,  $F$  - форм-фактор.

В конструкции катода, в качестве острий, использовались отрезки медной проволоки диаметром 0,3 мм закрепленные в обойме из нержавеющей стали. Характерные для катода осциллограммы напряжения и тока при  $d=20$  мм приведены на рис. 7.

Многоострийный катод обеспечивает удовлетворительное согласование диода и генератора, однако развиваемое при этом на диоде напряжение позволило передать за фольгу (Ti 50 мкм) лишь 2,5 Дж за один импульс.

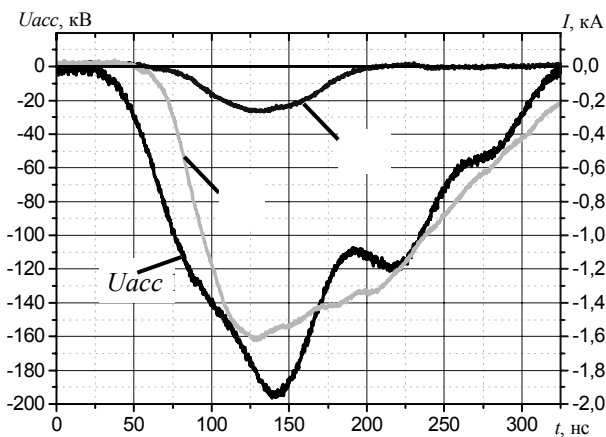


Рис 7. Характерные осциллограммы напряжения и токов. Медный многоострийный катод,  $d=20$  мм.

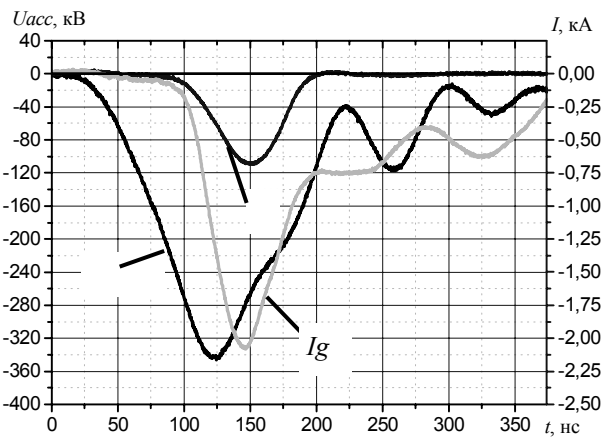


Рис 8. Характерные осциллограммы напряжения и токов. Плоский катод,  $d=20$  мм.

Эффект увеличения эффективности вывода электронного пучка через фольгу при увеличении запаздывания образования плазмы и соответствующей генерации электронного пучка описан в [13], где запаздывание достигалось путем применения специальных металлodieлектрических катодов. Применение катода с похожими свойствами позволило достигнуть  $U_{acc}=340$  кВ (Рис. 8) для того же ускоряющем промежутка, что обеспечило вывод за фольгу 6 Дж при 36 Дж подведенных к диоду. Кроме того, сократилось время протекания тока через диод, что уменьшает вероятность закорачивания ускоряющего промежутка катодной и анодной плазмой. Резкий нелинейный характер импеданса диода приводит к колебаниям, возникающим после основного импульса. Электроны, генерируемые в этот период, не имеют достаточной кинетической энергии для прохождения фольги, следовательно, вся энергия послеимпульсов может быть отнесена к тепловым потерям.

Смещение спектра электронов пучка в более высокоэнергетичную область предопределило применение данного типа катода при работе ускорителя в частотном режиме.

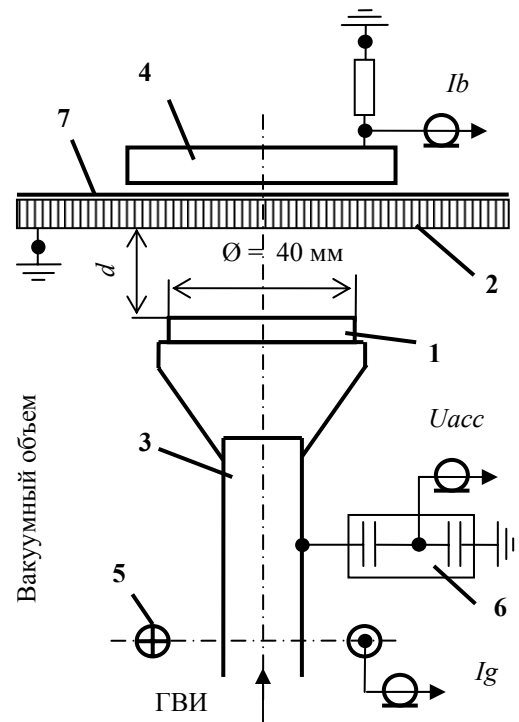


Рис 6. Схема эксперимента. 1 - катод; 2 - анод; 3 - катододержатель; 4 - коллектор ЦФ; 5 - пояс Роговского; 6 - емкостный делитель напряжения; 7 - фольга Ti 50 мкм.



**Генерация пучка электронов в частотном режиме работы ускорителя**

Частота генерирования пучка электронов задается блоком управления ГВИ в диапазоне от 1 до 100 имп./с.

При работе с частотой следования более 10 имп./с было установлено, что при величине  $d$  меньше 24 мм периодически наблюдаются вакуумные дуговые разряды, Наличие дуг также подтверждается характерными следами в области выводного окна в вакуумной камере. Последующие эксперименты проводились при величине  $d=24$  мм. Величина энергии переносимой пучком составила при этом 4,5 Дж.

Исследование стабильности работы коммутатора показало, что значение  $U_{зар}$  от импульса к импульсу отличается на величину  $\pm 1\%$ . Значение разброса  $U_{acc}$  зависит как от величины  $U_{зар}$ , так и от стабильности работы диода. Анализ статистических данных (рис.9) показывает, что для 98% импульсов  $U_{acc} > 360$  кВ.

С целью увеличения эффективности вывода электронного пучка из области генерации была реализована новая конструкция выводного окна (рис 10), отличающаяся отсутствием опорной решетки. Титановая фольга неподвижно фиксировалась по периметру и натягивалась [14], при этом провис фольги по оси окна составил 2,2 мм. Фольга также является анодом в электронном диоде. Эффективный диаметр окна уменьшился с 100 мм до 60 мм. Описанная конструкция при сохранении  $d=24$ мм позволила вывести через фольгу 8 Дж за импульс.

Отсутствие решетки привело к улучшению однородности распределения энергии пучка по сечению (рис. 11 а, б). В случае выводного окна с опорной решеткой присутствуют области без воздействия электронного пучка – тень опорной решетки. Анализ термограмм поверхности пенопластовой мишени (рис. 12 а, б) показал, что при отсутствии опорной решетки распределение энергии электронного пучка более однородно и, кроме того, симметрично относительно оси выводного окна. Для получения термограмм использовался тепловизор Fluke Ti10.

Работа ускорителя с частотой в длительном режиме предполагает защиту элементов и узлов от перегрева. Основные конструктивные источники тепла: коммутатор, магнитопровод трансформатора, катод, выводное окно. Все элементы в данной конструкции ускорителя, за исключением выводного окна, охлаждаются трансформаторным маслом. Масло прокачивается через внешний адсорбционный фильтр, где очищается от влаги, продуктов разложения и механических примесей, а затем снова подается в масляный объем ускорителя.

Выводное окно является наиболее «термически» нагруженным узлом ускорителя. Охлаждение выводного окна заключается в отводе тепла от порного фланца 1 (рис. 10) и от фольги 3 (рис. 10).

Съем тепла опорного фланца осуществляется протоком водопроводной воды. Для охлаждения выводной фольги использовались два способа: обдув потоком воздуха и обдув потоком водовоздушной смеси.

При воздушном охлаждении поток воздуха подавался нагнетателем по касательной к плоскости фольги таким образом, чтобы обдувалась вся поверхность фольги на пути прохождения электронного пучка. Скорость движения

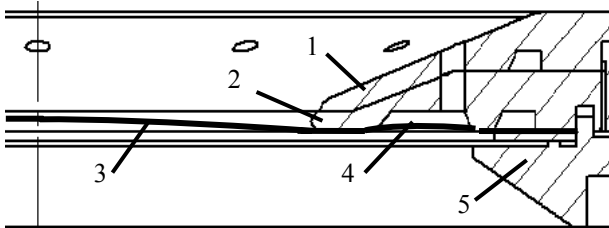


Рис 10. Конструкция выводного окна.  
1 – опорный фланец, 2 – теплоотвод,  
3 – Фольга Ti 50 мкм, 4 – натяжной паз,  
5 – прижимной фланец

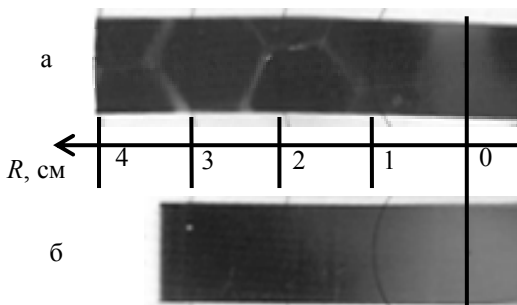


Рис 11. Отпечаток электронного пучка на дозиметрической плёнке ПОР.  
а. выводное окно с опорной решеткой,  
б – выводное окно без опорной решетки.

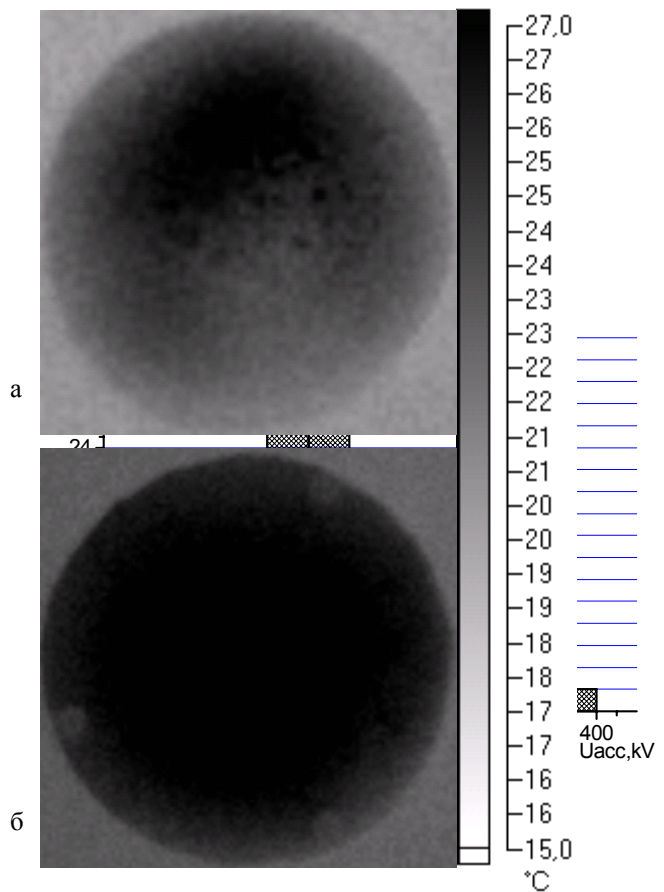


Рис 12. Термограмма поверхности пенопластовой мишени  
а. – выводное окно с опорной решеткой,  
б – выводное окно без опорной решетки

воздуха вдоль поверхности фольги составляла около 2м/с. В качестве нагнетателя использовался высоконапорный вентилятор 0,8ЭВ-2 с соответствующими воздуховодами сечением 16 см<sup>2</sup>.

Данный способ охлаждения разрешал работу ускорителя с частотой следования 20 имп./с в течение 30 минут непрерывной работы. При этом провис фольги по оси окна увеличился с 2,2 мм до 3 мм, что в целом никак не сказалось на работе ускорителя. После цикла получасовой работы эта же фольга испытывалась при больших частотах. Во время испытаний частота повышалась ступенчато с шагом 5 имп./с. Время работы на каждой частоте составляло не менее 20 с, без перерыва между ступенями. При частоте следования 40 имп./с после 20 с работы произошел прорыв фольги (рис. 13). Вероятная причина прорыва – локальный перегрев и плавление фольги.

Иной способ охлаждения выводной фольги заключался в обдуве выводного окна водовоздушным потоком. Расход воды для охлаждения составил 300 л/ч при десятикратном расходе воздуха. Относительно высокая теплоемкость воды и высокая скорость прокачки водовоздушной смеси позволили избежать перегрева фольги при работе с частотой вплоть до 50 имп./с в течении 30 минут, что составляет более 10<sup>5</sup> импульсов непрерывной работы ускорителя. После 10<sup>5</sup> импульсов показал отсутствие следов старения, со стороны вакуума поверхность фольги покрыта пленкой серого цвета, легко удаляемой механическим способом (рис. 14).

Дальнейшее увеличение частоты следования импульсов ограничивается мощностью вакуумной системы.

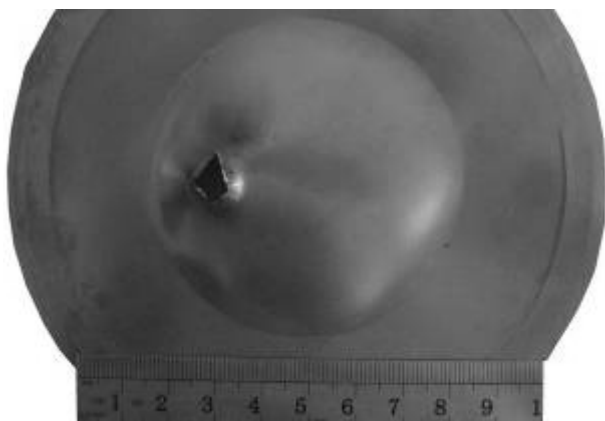


Рис. 13. Внешний вид фольги со стороны вакуума после  $4 \cdot 10^4$  импульсов с охлаждением воздушным потоком.

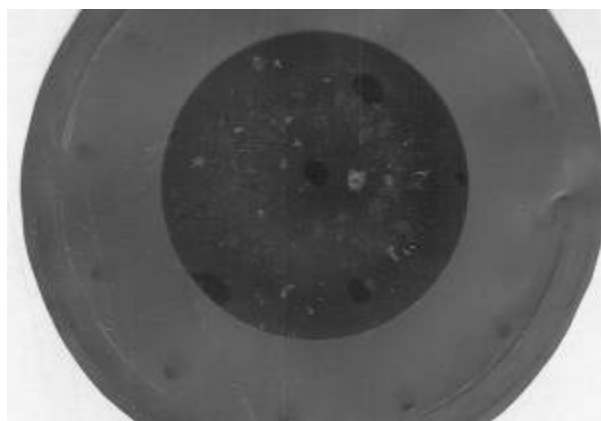


Рис 14. Внешний вид фольги со стороны вакуума после  $10^5$  импульсов с охлаждением водовоздушной смесью.

### **Заключение**

Рассмотренный в данном докладе импульсный электронный сильнотоочный ускоритель АСТРА ориентирован на промышленное применение. Простота устройства, использование серийно выпускаемого коммутатора, системы охлаждения выводного окна обеспечивают высокие эксплуатационные характеристики ускорителя.

- кинетическая энергия электронов 360 кэВ;
- длительность импульса ускоряющего напряжения на полувысоте 200 нс;
- энергия, переносимая пучком, 8 Дж за импульс;
- возможность длительной непрерывной работы с частотой 1÷20 имп./с с воздушным охлаждением выводной фольги;
- возможность длительной непрерывной работы с частотой 1÷50 имп./с с водовоздушным охлаждением выводной фольги;
- высокая ремонтпригодность;
- компактные размеры электроустановки;

### **Список используемой литературы**

1. Бардаханов С. П., Корчагин А. И., Куксанов Н. К. и др. Получение нанопорошков испарением исходных веществ на ускорителе электронов при атмосферном давлении // ДАН. 2006. Т. 409, № 3. С. 320–323
2. Абдуллин Э.Н., Чмух В.Н. Отверждение полиэфирных смол, стимулированное облучением импульсным электронным пучком // Химия высоких энергий. – 1979. – Т. 13. – В. 2. – С. 181 – 182.
3. М.Э. Вейс, Ю.И. Голубенко, Н.К. Куксанов, П.И. Немытов, В.В. Прудников, Р.А. Салимов, С.Н. Фадеев. «Ускоритель ЭЛВ-12 и его применение в природоохранных технологиях», Вестник “Радтех-Евразия” No 1(11), Москва-Новосибирск-2002.
4. Месяц Г.А., Котов Ю.А., Шпак В.Г., Соковнин С.Ю. Использование сильнотоочных наносекундных электронных пучков для стерилизации// Урал: наука, экология. Екатеринбург, 1999. С. 241-255
5. Пикаев А.К. Современная радиационная химия: Твердое тело и полимеры: Прикладные аспекты. М.: Наука, 1987. 448 с.
6. М.Э. Вейс, Н.К. Куксанов, В.Е. Долгополов, А.В. Лаврухин, Р.А. Салимов, П.И. Немытов и др. «Усовершенствованный промышленный ускоритель электронов для облучения кабельной изоляции», Кабели и провода, № 4 (287), М., 2004, с.16-19.

7. Ю.А.Котов, С.Ю.Соковнин //Частотный наносекундный ускоритель электронов УРТ-0,2, ПТЭ, № 4, 1997, с.84-86;
8. Ю.А. Котов, С.Ю. Соковнин, М.Е.Балезин// Частотный наносекундный ускоритель электронов УРТ-0,5/ПТЭ, 2000, №1, с. 112-115;
9. Р. А. Салимов. Мощные ускорители электронов для промышленного применения. УФН, т. 170. №2. стр. 197;
10. Канаев Г.Г., Кухта В.Р., Лопатин В.В., Нашилевский А.В., Ремнев Г.Е, Уемура К., Фурман Э.Г. Высоковольтный импульсный генератор для электроразрядных технологий ПТЭ, 2010, № 1, с. 105–109.
11. Месяц Г.А. Импульсная энергетика и электроника М: Наука, 2004. 704 с.
12. Месяц Г.А., Проскуровский Д.И. Импульсный электрический разряд в вакууме. Новосибирск: Наука, 1984. 256 с.
13. Котов ЮЛ, Соковнин С.Ю., Балезин М.Е. // Письма в ЖТФ. 2003. Т. 73. Вып. 4. С. 124-128.
14. Пат. № 1688775. РФ. Н05Н5/02. Выводное окно ускорителей электронов / Никишкин В.И., Иванов А.С., Муравьев Г.В., Свиныин М.П. - № 4643252/21; Заяв. 09.11.88; Опубл. 30.04.94.

## ЭПР-ОТКЛИК $\gamma$ – ОБЛУЧЕННЫХ ВЫСУШЕННЫХ ОРГАНОВ ПЛОДОВ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ПЛОДОВ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ УФ – СВЕТОМ

Рухин А.Б., Жакпаров Р.К., Бердибекова Г.Н.  
Институт Ядерной Физики НЯЦ РК, г. Алматы, Казахстан

Вопросы, относящиеся к продуктам питания людей, заслуживают серьезного внимания, т.к. положение с продовольствием в мире имеет явную тенденцию к ухудшению: потребности увеличиваются, потери и цены растут. На рисунке 1 – изменение цен по годам и месяцам (данные ФАО).

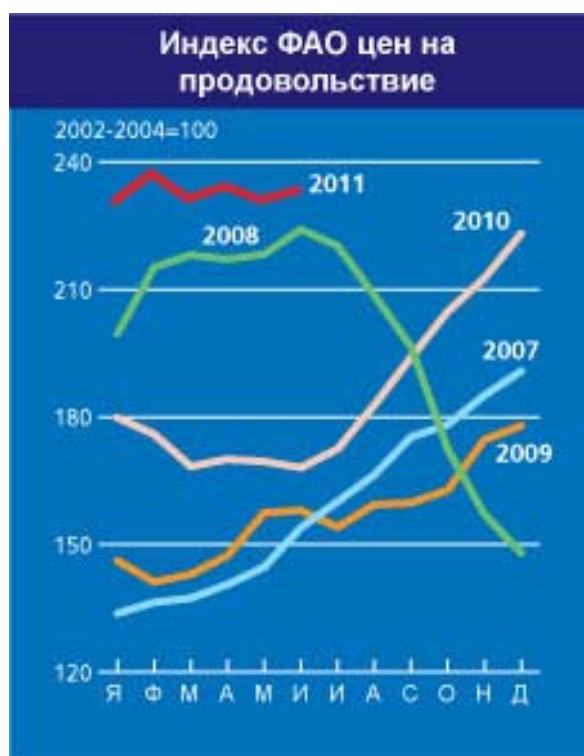


Рисунок 1 – Рост цен на продукты по годам и месяцам

Кроме сезонных влияний постоянный рост цен вызван увеличением населения, ростом производства биотоплива, вооруженными конфликтами, пожарами, аномалиями погоды и др., включая порчу при хранении и транспортировке.

Сейчас засуха и конфликты вызвали голод на юге Сомали. Спасает голодающих ФАО (Food and Agriculture Organization of the United Nations), используя свои фонды и авиацию спонсоров.

В 1963 г. ФАО и ВОЗ создали Комиссию Кодекс Алиментариус (лат. "Кодекс Продовольственный"). В нее входят 176 государств-членов и более 200 организаций - наблюдателей. Встречи ежегодные в Риме или Женеве. В 2005 по Кодексам Комиссии было продано продуктов на 700 млрд. долл. США.

Для снижения потерь Комиссия Кодекс Алиментариус и МАГАТЭ рекомендуют облучать пищевые продукты. На таких продуктах для информации потребителей необходимо ставить знак «Радура» Рисунок 2 [1].

Нельзя сказать, что быстрая дешевая надежная технология вошла в жизнь без проблем. Общественность не довольна обоснованием безопасности радиационной стерилизации пищевых продуктов (РСПП) для здоровья живущего и будущих поколений, реальным контролем за РСПП со стороны потребителей. Это вызвано рядом причин:

1. Нет единого критерия безопасности РСПП.
2. Испытания длительны и касаются большого числа РСПП.
3. Стандарты [2-4] непонятны большинству и обычно позволяют определить не дозу, а факт стерилизации, но не всегда верно и простым путем.



Рисунок 2 – Знак «Радура»

1,2. ВОЗ и МАГАТЭ создали действующие критерии РБ населения и персонала. Подобные критерии хотели применить к продуктам. Но их множество видов, а дозы облучения на 5-6 порядков больше. Кинетика радиолитизации продуктов сложна и не изучена. Влияние питания облученными продуктами на людей не проверено.

3. Критерии РБ нормируют дозы облучения людей. Сделали нормирование и облучения РСПП. Для людей есть ретроспективный метод определения полученной дозы: ЭПР – дозиметрия зубной эмали (ЗЭ). ЗЭ – самая твердая ткань человека, минерал гидроксиапатит. РСПП почти всегда без зубов. Поэтому в [2] рекомендуют использовать кости мяса и рыбы как дозиметры. Но они не так тверды, как ЗЭ. Парамагнитные центры (ПМЦ) в них гораздо быстрее отжигаются. Кости могут побывать на свету, облучиться УФ – светом. (ЗЭ от передних зубов из-за этого не используют). Большая проблема, кроме отжига ПМЦ и облучения УФ - светом, еще в том, что при облучении до доз стерилизации (до 10 кГр) целлюлозы [3] и сахаров [4] концентрация ПМЦ проходит через ряд экстремумов. Определение дозы облучения по таким калибровочным кривым невозможно.

Можно заключить, что «перенос» критериев радиационной безопасности с людей на продукты питания не укомплектован контролем стерилизации и не проверен длительным питанием населения РСПП.

Наш подход к этой проблеме изложен в [5] наряду с другими вопросами. Мы приняли за аксиому существование в земных условиях у всех видов плодов, растений защитной реакции на действие радиации, поскольку они длительное время сохраняют свои ценные свойства (вкусовые, питательные, целебные и др.).

Эта защита адаптирована к УФ-свету, перекрывающему энергии ковалентных связей органики. Возможно, что УФ - облучение – важный фактор эволюции растений и радиолитизация помогает пищевым продуктам спастись от повреждений и вредителей, стать вкусными, ароматными и красивыми, полезными для человека и животных. Тогда надо исследовать не плоды целиком, а ряд их органов, например, корку, мякоть и семена: в том порядке, в каком ослабляется УФ - свет. Характерные отношения свойств этих органов после облучения УФ - светом можно принять за норму (*критерий*). Относительно него можно оценивать изменения свойств в РСПП, включая констатацию факта - была ли использована радиационная стерилизация пищевых продуктов или нет.

Предлагаем учитывать не концентрацию накапливаемых в продуктах за время жизни ПМЦ, как у людей в ЗЭ, а изменения продуктов при радиолитизации. (Считая радиолитизацию необратимой многостадийной «разборкой» продукта, можно оценить, до какой стадии она реализована и годится ли для пищи такой остаток продукта).

Так можно убедить сомневающихся в безопасности РСПП лиц, обеспечить права потребителей на полную информацию о купленных пищевых продуктах, устранить беспокойство о здоровье и сделать радиационную обработку продуктов желаемой.

Основанием для адаптированного к РСПП подхода стали данные об изменении сигнала ЭПР при  $\gamma$  - облучении высушенных частей фруктов.

ЭПР образцы готовили термовакuumной сушкой измельченных компонентов фруктов с разной физиологической функцией.

Регистрацию спектров проводили на ЭПР - спектрометре ESP 300 E фирмы "Bruker" (Германия) в режиме "медленного прохождения" в X -диапазоне (0,03 м) при комнатной температуре. Использовали цилиндрический резонатор с добротностью  $\sim 7000$ , кварцевые ампулы и оптимизированные условия регистрации. Реперами на спектрах служили линии 3 и 4 СТС  $Mn^{2+}$  в порошке MgO. Интенсивность радиационного сигнала росла после  $\gamma$  - облучения и, приведенная к равным условиям регистрации, была мерой концентрации ПМЦ в образце.

Облучения проводили на  $\gamma$  - установке РХМ- $\gamma$ -20 с изотопом  $^{60}Co$  при 300 К.

На рисунках 4-7 показаны зависимости сигнала ЭПР в компонентах банана, финика, яблока и грейпфрута от дозы облучения до 10 кГр.



Рисунок 3 – Общий вид спектрометра ESP 300E

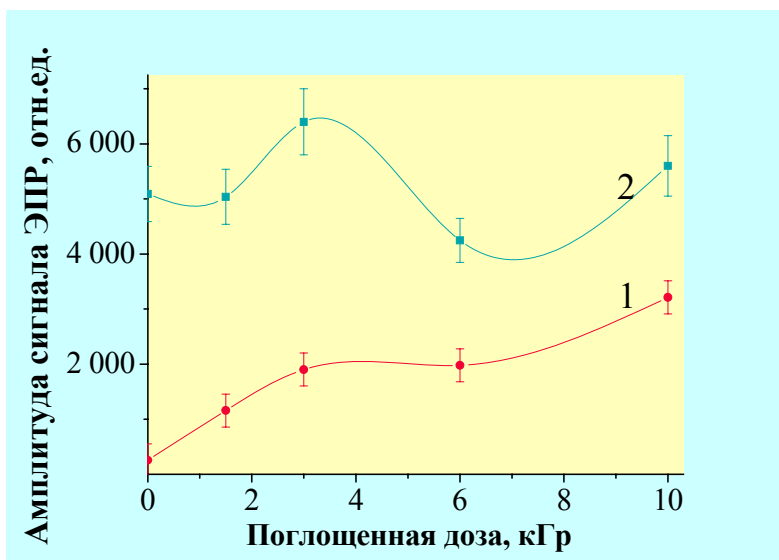


Рисунок 4 – Зависимости сигнала ЭПР от дозы облучения в мякоти (1) и корке (2) банана.

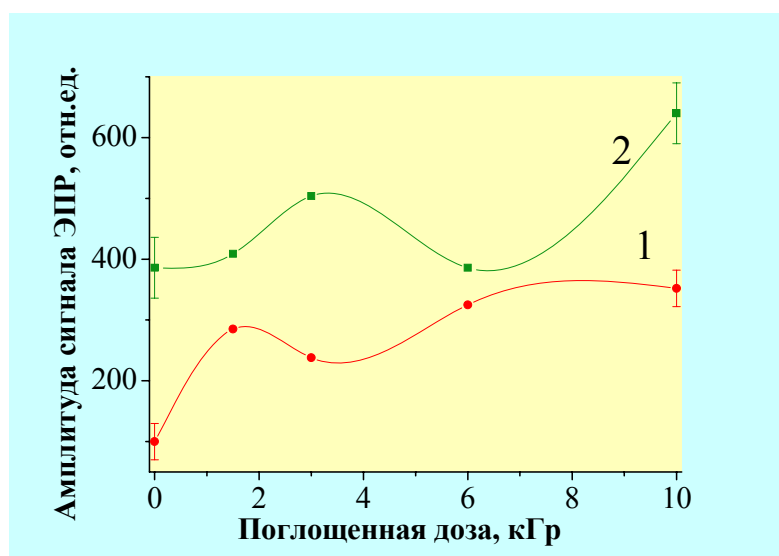


Рисунок 5 – Зависимости сигнала ЭПР от дозы облучения в мякоти (1) и корке (2) финика



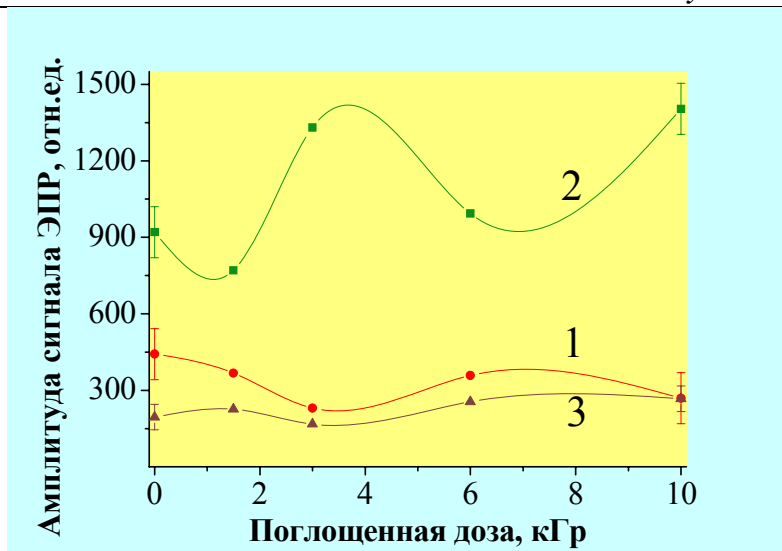


Рисунок 6 – Зависимости сигнала ЭПР от дозы облучения в мякоти (1) и корке (2) и семенах (3) яблока

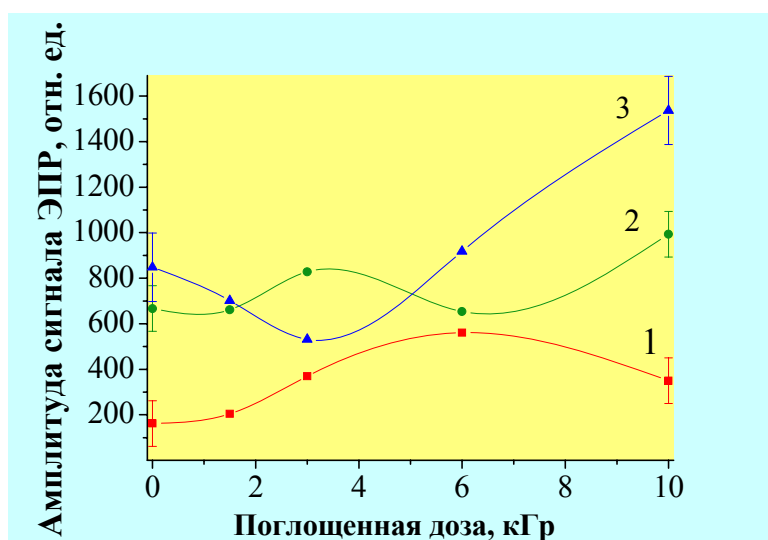


Рисунок 7 – Зависимости сигнала ЭПР от дозы облучения в мякоти (1) и корке (2) и внутренней части кожуры грейпфрута (3)

Фрукты облучены до облучения образцов в ИЯФ, т.к. кривые идут не из нуля. Банан и финик облучила природа УФ – светом. Поэтому исходный сигнал ЭПР в корке гораздо больше, чем в мякоти. Зависимости (1) направлены к нулю и имеют цикл колебания (или больше) от дозы 10 кГр. Яблоко и грейпфрут стерилизованы ранее жестким излучением. У них меньше и отношение исходных сигналов в корке и мякоти, и доля цикла радиолитиза за 10 кГр (это более далекие от начала облучения участки зависимостей). Кривая (3) на рис.7 *примечательна* еще и тем, что значения выше кривой (2) невозможны без  $\gamma$ -облучения и тяжелого элемента в мягкой части кожуры.

Таким образом, два из 4-х фруктов с базаров Алматы оказались стерилизованы радиацией [5], хотя знака «радуры» никто не видел. Сравнение сигналов ЭПР в кожуре и мякоти дает такой вывод по изменению ЭПР-свойств фруктов, а не величины «среднего» сигнала. Использован не «горизонтальный» подход, как он назван в [2-4], а скорее «вертикальный» (имея в виду, что УФ- свет ослабляясь идет в продукты, а жесткие излучения идут без ослабления через весь фрукт).

Характерные особенности зависимостей ЭПР – отклика  $\gamma$  – облученных частей фруктов частично известны по данным о радиолитизе полимеров. Но на РСПП они раскрылись глубже, выяснилась их универсальность и рациональность. Например, цикличность. Она снижает концентрацию ПМЦ в плодах при больших дозах облучения. Меньший период цикла в корке – для того, чтобы быстрее ее разрушать, спасая мякоть и семена.

То, что в мякоти и корках разных фруктов с разными вкусовыми, физическими и химическими свойствами наблюдаются *подобные отличия ЭПР – характеристик*, может быть связано с *подобием физиологических функций* этих частей плодов: основная функция мякоти *питательная*, корок – *защитная*. Но как они могут реализоваться?

Было предположено, что если продукты радиолитиза (ПМЦ) имеют электрический заряд и в корках подвижны, то за счет электростатического взаимодействия они перекроют всю поверхность быстрее и начнут аннигилировать с очередными ПМЦ другого знака раньше, чем в мякоти, где ПМЦ, скорее всего, неподвижны и могут образовывать сгустки за счет случайного места образования. Так можно объяснить эту особенность.

Понимание процесса радиолитиза плодов могли облегчить сведения о зарядах в разных тканях фруктов. Эти данные можно легко и быстро получить для плодов разных видов. Плоды для электрических измерений были куплены

на ярмарках и базарах г. Алматы: овощи, созревающие на воздухе (огурцы, помидоры, болгарский перец, кабачок, баклажан), корнеплоды (картофель, редис, морковь, свекла, редька, лук, чеснок), ягоды (клубника, черешня), абрикос, апельсин, лимон, киви. Для измерений использовали прибор «Professional Digital Multimeter UNI-T». Облучения выполняли кварцевым источником УФ - света, служащим для стерилизации медицинских помещений.

Во всех случаях была обнаружена разность потенциалов между подкоркой и мякотью. Она составляла от десятков до сотен мВ. Неожиданным оказался ток постоянный затухающий со временем. Величина его варьировала от единиц до десятков мкА. Направление тока у всех плодов отрицательное, противоположное напряжению. Это объяснило рост напряжения после присоединения прибора, который обычно наблюдался в первое время. Влияние прибора нельзя признать решающим (при измерениях напряжения входное сопротивление велико, как и при малых токах). Иногда после максимума напряжение уменьшалось. Обычный временной масштаб изменений составлял минуты. Чем больше размер плодов, тем медленнее менялись ток и напряжение. В сочных спелых ягодах клубники ток быстро упал до нуля мкА, напряжение уменьшалось медленнее, может быть, из-за нормального малого тока через прибор.

Облучение УФ-светом увеличивает ток, меньше – напряжение между компонентами плодов. УФ-облучение больше влияет на корнеплоды. Однако и кабачок, видимо, вырос без УФ-облучения, возможно, закрытый листьями или в парнике.

Разность потенциалов в корке относительно мякоти ожидалась, ток между ними - неожиданный эффект, впрочем, он переходной и аппаратный. Возможно, что кроме сокращения цикла радиолитиза в корке, электрический потенциал выполняет еще какие-то физиологические функции. Этот эффект полезен хотя бы потому, что указывает на единство среди плодов и, по-видимому, растений, и заслуживает более тщательного изучения.

### **Список использованной литературы**

- 1 ICGFI. Guidelines for the authorization of food irradiation generally or by classes of food. International Consultative Group on Food Irradiation Document 15. – IAEA, Vienna, 1994. – 38 p.
- 2 EN 1786: 1996. Foodstuffs – Detection of irradiated food containing bone – Method by ESR spectroscopy.
- 3 EN 1787: 2000. Foodstuffs – Detection of irradiated food containing cellulose by ESR spectroscopy.
- 4 EN 13708: 2000. Foodstuffs – Detection of irradiated food containing crystalline sugar by ESR spectroscopy.
- 5 Рухин А.Б., Жакпаров Р.К., Бердибекова Г.Н. Изменения сигнала ЭПР в облученных фруктах, ввозимых в Алматы. // Вестник ЕНУ, №2 (81), 2011. С. 123-128.



**NUCLEAR ENERGY**

**DEFINITION OF RATE CONSTANTS OF HYDROGEN ISOTOPES INTERACTION WITH LITHIUM CPS**

*Gordienko Yu.N., Sadvakassova A.O., Tazhibaeva I.L., Kenzhin E.A., Kulsartov T.V., Ponkratov Yu.V., Tulubaev Ye.Yu., Barsukov N.I., Kulsartova A.V.* 8

**PECULIARITIES OF DEFECT FORMATION IN BARIUM AND STRONTIUM CERATES UNDER REACTOR IRRADIATION**

*Khromushin I.V., Aksenova T.I., Zhotabaev Zh. R., Munasbaeva K.K.* 12

**RADIATION DEFECTS ON OXIDE MATERIAL SURFACE**

*Tuseyev T.* 16

**RADIATION-HETEROGENEOUS PROCESSES IN PHOSPORISED STAINLESS STEEL OF MARK 08H18X10 IN CONTACT WITH WATER**

*Agayev T.N., Garibov A.A., Hashemi M.J., Gahramani M.R., Eyubov K.T.* 19

**RADIOLYTIC-THERMO CATALYTIC PROCESSES IN SYSTEM Ra-SiO<sub>3</sub>+H<sub>2</sub>O**

*Agaev T., Garibov A.A., Mansimov Z.A., Eyubov K.T.* 22

**RESEARCHES OF REACTOR RADIATION INFLUENCE ON PROCESSES OF HYDROGEN ISOTOPES INTERACTION WITH MATERIALS OF FUSION REACTORS**

*Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Tazhibaeva I.L., Barsukov N.I., Gordienko Yu.N., Ponkratov Yu.V., Sadvakassova A.O., Tulubaev Ye.Yu., Chikhray Ye.V.* 25

**RESEARCHES OF TRITIUM AND HELIUM GENERATION AND RELEASE PROCESSES FROM LIQUID LITHIUM AT THE REACTOR IRRADIATION**

*Kulsartov T.V., Kenzhin E.A., Tazhibaeva I.L., Barsukov N.I., Gordienko Yu.N., Ponkratov Yu.V., Sadvakassova A.O., Tulubaev Ye.Yu., Kulsartova A.V.* 31

**SOLID SURFACES MODIFICATION AND DIAGNOSTICS AT GRAZING LOW-ENERGY ION BOMBARDMENT**

*Umarov F. F., Dzhurakhalov A.A., Mukashev K.M.* 33

**АВТОЛОКАЛИЗАЦИЯ ЭЛЕКТРОННЫХ ВОЗБУЖДЕНИЙ И ГАММА ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ ИТРИЙ-СКАНДИЙ-ГАЛЛИЕВОГО ГРАНАТА**

*Курбанов А.М.* 36

**АВТОМАТИЗИРОВАННЫЕ СИСТЕМЫ РАДИАЦИОННОГО И РАДИАЦИОННО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКОГО КОНТРОЛЯ РАДИАЦИОННО-ОПАСНЫХ ОБЪЕКТОВ**

*Нурлыбаев К.* 39

**ВЛИЯНИЕ РАДИАЦИИ НА ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА НЕКОТОРЫХ ОКСИДНЫХ МАТЕРИАЛОВ**

*Абдукадырова И.Х.* 42

**ВЛИЯНИЕ ЭЛЕМЕНТОВ ВАКУУМНОЙ КАМЕРЫ ТОКАМАКА КТМ НА УСТОЙЧИВОСТЬ ПЛАЗМЕННОГО ШНУРА**

*Чектыбаев Б.Ж., Шаповалов Г.В., Шумайлова О.В., Садыков А.Д.* 45

**ВОЗМОЖНОЕ РАЗВИТИЕ МЕТОДОВ ПОЗИТРОННОЙ АННИГИЛЯЦИОННОЙ СПЕКТРОСКОПИИ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ НАНОЯВЛЕНИЙ В НЕФТЕГАЗОДОБЫЧЕ**

*В.И.Графутин, Прокопьев Е.П.* 49

**ДЕТЕКТОРЫ ТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ НА ОСНОВЕ ПРОСТЫХ ПОЛУПРОВОДНИКОВ**

*Варлачев В.А., Емец Е.Г., Солодовников Е.С.* 55

**ДИНАМИКА НАКОПЛЕНИЯ НАВЕДЕННОЙ АКТИВНОСТИ В СИСТЕМАХ ХРАНЕНИЯ И ТРАНСПОРТИРОВКИ ОТРАБОТАННОГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА**

*Кравченко Н.И., Губайдулин И.М., Беденко С.В.* 57

<b>ИЗМЕНЕНИЕ МИКРОСТРУКТУРЫ ОБЛУЧЕННОЙ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ КОНСТРУКЦИОННОЙ СТАЛИ ПОСЛЕ МЕХАНИЧЕСКИХ ИСПЫТАНИЯХ НА ПОЛЗУЧЕСТЬ И С ПОСТОЯННОЙ СКОРОСТЬЮ ДЕФОРМАЦИИ</b>	
<i>Киреев В.В., Диков А.С., Кислицин С.Б., Нестерова А.Ю.</i>	58
<b>ИСПЫТАНИЯ НА ДЛИТЕЛЬНУЮ ПРОЧНОСТЬ КОНСТРУКЦИОННОЙ СТАЛИ 12X18H10T ОБЛУЧЕННОЙ В РЕАКТОРЕ НА БЫСТРЫХ НЕЙТРОНАХ БН – 350</b>	
<i>Диков А.С., Горцев А.П., Киреев В.В. Кислицин С.Б., Нестерова А.Ю.</i>	62
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ ВОЗМОЖНОСТИ ГАЗОФАЗНОГО ОСАЖДЕНИЯ АЛМАЗНЫХ ПЛЕНОК НА ПОВЕРХНОСТЬ ЯДЕРНОЙ КЕРАМИКИ</b>	
<i>Гайдаичук А.В., Линник С.А.</i>	67
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ УПРУГИХ СВОЙСТВ КОНСТРУКЦИОННОГО АЛЮМИНИЕВОГО СПЛАВА ТИПА АМ Г-2</b>	
<i>Абдукадырова И.Х.</i>	69
<b>К ВОПРОСУ О РАДИАЦИОННОМ РАЗОГРЕВЕ РЕАКТОРНЫХ МАТЕРИАЛОВ</b>	
<i>Избасханова А.Т., Кенжин Е.А.</i>	71
<b>КОНВЕРСИЯ РЕАКТОРА ИВГ.1М</b>	
<i>Прозорова И.В., Алейников Ю.В., Жумадилова У.А.</i>	75
<b>КОНЦЕПЦИЯ ПОВЫШЕНИЯ РЕСУРСНЫХ ХАРАКТЕРИСТИК МАТЕРИАЛА ОБОЛОЧЕК ТВЭЛОВ БЫСТРОГО РЕАКТОРА НА ОСНОВЕ ДИФфуЗИОННЫХ КРИТЕРИЕВ</b>	
<i>Короткий А.И., Колосков В.М., Субботин Ю.Н., Черных Н.И.</i>	80
<b>МЕТОДИКИ ПОСЛЕРЕАКТОРНОГО ИССЛЕДОВАНИЯ ТВЭЛОВ ЯЭДУ</b>	
<i>Дерявко И.И.</i>	84
<b>МОДЕЛИРОВАНИЕ ВЫДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ И ГЕЛИЯ ИЗ ОБЛУЧЕННОГО БЕРИЛЛИЯ РАЗЛИЧНЫХ МАРОК</b>	
<i>Гордиенко Ю.Н., Кульсартов Т.В., Кенжин Е.А., Тажимаева И.Л., Барсуков Н.И., Понкратов Ю.В., Садвакасова А.О., Тулубаев Е.Ю.</i>	89
<b>МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ДИФфуЗИИ И ФАЗООБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТЫХ СИСТЕМАХ МЕТАЛЛ-МЕТАЛЛОИД</b>	
<i>Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Русаков В.С., Кадыржанов К.К.</i>	94
<b>МОДЕЛИРОВАНИЕ ТЕРМИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННЫХ ПРОЦЕССОВ ДИФфуЗИИ И ФАЗООБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТЫХ СИСТЕМАХ С ТРЕМЯ ИЗОТОПАМИ ДВУХ ЭЛЕМЕНТОВ</b>	
<i>Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Русаков В.С., Кадыржанов К.К.</i>	98
<b>МОДЕЛЬ СТРОЕНИЯ НАНОСТРУКТУРИРОВАННЫХ ПОКРЫТИЙ НА ОСНОВЕ Ni-Cr, ПОЛУЧЕННЫХ МЕТОДОМ ПЛАЗМЕННОЙ ДЕТОНАЦИИ</b>	
<i>Д.Л. Алонцева</i>	103
<b>МОДИФИЦИРОВАНИЕ ТВЕРДОКИСНЫХ ПРОТОННЫХ ПРОВОДНИКОВ ИОНАМИ КИСЛОРОДА И АРГОНА</b>	
<i>Хромушин И.В., Аксенова Т.И., Мунасбаева К.К., Жотабаев Ж.Р., Тусеев Т.Т., Дегтярев В.В., Русакова А.В.</i>	107
<b>НЕЙТРОНОДИФРАКЦИОННОЕ ИЗУЧЕНИЕ ЯВЛЕНИЙ САМОЗАЛЕЧИВАНИЯ И САМОКРИСТАЛЛИЗАЦИИ ПРОДУКТОВ ДЕГИДРИРОВАНИЯ ТРИГИДРОКСИДОВ РЕДКОЗЕМЕЛЬНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ</b>	
<i>Хидиров И.</i>	111
<b>О ЕДИНОЙ ПРИРОДЕ ТРЕЩИН РАДИАЦИОННОГО И НЕРАДИЦИОННОГО ПРОИСХОЖДЕНИЯ НА ПРИМЕРЕ МОНОКРИСТАЛЛИЧЕСКОГО КРЕМНИЯ, ПОДВЕРГНУТОГО АНОДНОМУ ТРАВЛЕНИЮ</b>	
<i>Тыныштыкбаев К.Б., Рябикин Ю.А., Токмолдин С.Ж., Рақыметов Б.А.</i>	117

<b>О РОЛИ ПРИМЕСИ ХРОМА НА ОБРАЗОВАНИИ РАДИАЦИОННЫХ ЦЕНТРОВ ОКРАСКИ В КРИСТАЛЛАХ СО СТРУКТУРОЙ ГРАНАТА</b>	121
<i>Курбанов А.М., Нуритдинов И., Гаптаров А.</i>	
<b>О ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИХ СВОЙСТВ КОНСТРУКЦИОННЫХ АЛЮМИНИЕВЫХ СПЛАВОВ</b>	125
<i>Абдукадырова И.Х., Байтелесов С.А., Аликулов Ш.А.</i>	
<b>ОПРЕДЕЛЕНИЕ РЕЖИМОВ РЕАТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ РАСЧЕТНО- ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫМ МЕТОДОМ</b>	128
<i>Пахниц В.А., Алейников Ю.В., Попов Ю.А., Прозорова И.В. Токтаганов М.О.</i>	
<b>ОПТИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ СОСТОЯНИЯ СТРУКТУРЫ ОБЛУЧЕННОГО В РЕАКТОРЕ КВАРЦА</b>	133
<i>Абдукадырова И.Х.</i>	
<b>ПОЛУЧЕНИЕ ПРОМЫШЛЕННОГО ВОДОРОДА МЕТОДОМ ЭЛЕКТРОЛИЗА</b>	135
<i>Касаева А.Ж., Казбекова Б.К.</i>	
<b>ПОСЛЕЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ СОСТОЯНИЯ МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ ИТЭР</b>	137
<i>Бакланов В.В., Дерякко И.И., Кукушкин И.М., Коянбаев Е.Т., Ударцев С.В.</i>	
<b>ПРОГНОЗИРОВАНИЕ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ МОДЕЛЬНЫХ ТВС В ЭКСПЕРИМЕНТАХ НА ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОМ РЕАКТОРЕ ИГР</b>	141
<i>Витюк В.А., Вурим А.Д., Гайдайчук В.А., Пахниц А.В., Алейников Ю.В., Жотабаев Ж.Р.</i>	
<b>РАДИАЦИОННОЕ УПРОЧНЕНИЕ И КОРРОЗИЯ НАНОСТРУКТУРИРОВАННОЙ СТАЛИ 08X18H10T, ОБЛУЧЕННОЙ НЕЙТРОНАМИ</b>	146
<i>Максимкин О.П., Гусев М.Н., Цай К.В., Яровчук А.В., Добаткин С.В.</i>	
<b>РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕРМИЧЕСКИХ ИСПЫТАНИЙ МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ ИТЭР</b>	152
<i>Ударцев С.В., Кулжанов Д.Ш., Зуев В.А., Дерякко И.И., Зайцев Д.Н.</i>	
<b>РЕКОМБИНАЦИОННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ КРИСТАЛЛОВ <math>Gd_3Sc_2Al_3O_{12}</math> АКТИВИРОВАННЫХ ИОНАМИ НЕОДИМА И ХРОМА</b>	155
<i>Курбанов А.М., Нуритдинов И., Гаптаров А.</i>	
<b>РОЛЬ ЯДЕРНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ В УСТОЙЧИВОМ РАЗВИТИИ РОССИИ</b>	158
<i>Ветров В.А.</i>	
<b>СОЗДАНИЕ СИСТЕМЫ НАКОПЛЕНИЯ И ОРГАНИЗАЦИИ ДОСТУПА К ЗНАНИЯМ В ОБЛАСТИ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РК – "БАЗЫ ЗНАНИЙ ПО АЭ"</b>	163
<i>Батырбеков Э.Г., Цай Е.Е., Уханов С.В.</i>	
<b>СОПРЯЖЕНИЕ ТЯЖЕЛОВОДНОГО ГАЗООХЛАЖДАЕМОГО РЕАКТОРА С ЦИКЛОМ РЕНКИНА</b>	174
<i>Котов В.М., Витюк Г.А., Иркимбеков Р.А., Мухаметжарова Р.А.</i>	
<b>ТЕРМИЧЕСКАЯ ПОЛЗУЧЕСТЬ ОБЛУЧЁННОЙ БЫСТРЫМИ НЕЙТРОНАМИ НЕРЖАВЕЮЩЕЙ СТАЛИ</b>	179
<i>Ганеев Г.З., Кислицин С.Б.</i>	
<b>ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ПОРИСТОГО КРЕМНИЯ С МОЗАИЧНОЙ СТРУКТУРОЙ ПОВЕРХНОСТИ ДО И ПОСЛЕ ТЕРМОВАКУУМНОГО ОТЖИГА</b>	181
<i>Ахметов К.М., Болатханкызы Д., Глазман В.Б., Елеуов М.А., Киккарин С.М., Ракыметов Б.А., Рябкин Ю.А., Токмолдин С.Ж., Тыныштыкбаев К.Б.</i>	
<b>ХАРАКТЕР ПОВРЕЖДЕНИЯ БЕРИЛЛИЯ СИЛЬНОТОЧНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ</b>	185
<i>Дерякко И.И., Кукушкин И.М., Тарасенко Е.В., Бакланов В.В.</i>	

**NUCLEAR PHYSICS**

**EXPERIMENTAL NUCLEAR REACTION DATA LIBRARY (EXFOR) - COMPILATION AND DISSEMINATION OF NUCLEAR REACTION DATA PROVIDED BY NUCLEAR REACTION DATA CENTRES NETWORK**

*Semkova V., Otuka N., Simakov S.P., Zerkin V.* 191

**АВТОМАТИЗИРОВАННАЯ МЕТОДИКА ИДЕНТИФИКАЦИИ И ИЗМЕРЕНИЯ АКТИВНОСТЕЙ ПО АННИГИЛЯЦИОННЫМ Г-КВАНТАМ**

*Артемов С.В., Жураев О.Ш., Караходжаев А.А., Каюмов М.А., Худайкулов И.Х., Якушев В.П.* 195

**АНАЛИЗ СТРУКТУРЫ ЯДЕР  ${}^6\text{He}$  И  ${}^8\text{He}$**

*Ибраева Е.Т., Прмантаева Б.А., Темирбаев А., Тлеусова И.* 198

**АНАЛИЗ СФЕРИЧНОСТИ МЕЗОНОВ В АНТИПРОТОН–ПРОТОННЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ ПРИ ИМПУЛЬСЕ 22,4 ГЭВ/С**

*Боос Э.Г., Темиралиев Т., Избасаров М., Самойлов В.В.* 202

**АНАПОЛЬНЫЙ И ТОРОИДНЫЙ МОМЕНТЫ В СОВРЕМЕННОЙ ФИЗИКЕ**

*Карташов В.М.* 206

**АНИЗОТРОПИЯ СОЛНЕЧНЫХ КОСМИЧЕСКИХ ЛУЧЕЙ**

*Чебакова Е.А.* 210

**ВОЗМОЖНОСТИ ИСПОЛЬЗОВАНИЯ НУКЛИДА  ${}^{152}\text{Eu}$  И В НЕТРАДИЦИОННЫХ ЯДЕРНО-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКИХ ЭКСПЕРИМЕНТАХ**

*Карташов В.М., Калдыбаева Д.Н., Алдияров Н.У., Ахметов Е.З., Сатбаева З.А.* 213

**ВОССТАНОВЛЕНИЕ ВИГНЕРОВСКОЙ SU(4)-СИММЕТРИИ В ОБЛАСТИ ЯДЕР С НЕЧЕТНЫМ МАССОВЫМ ЧИСЛОМ  $A$  И ИЗОСПИНОМ  $T_z \geq 53/2$**

*Нурмухамедов А.М., Салихбаев У.С.* 216

**ВЫСОКОЧУВСТВИТЕЛЬНЫЙ МАГНИТОГРАФ ДЛЯ МОНИТОРИНГА ПОСТОЯННЫХ И НИЗКОЧАСТОТНЫХ МАГНИТНЫХ ПОЛЕЙ**

*Казанцев С.И., Коблик Ю.Н., Рахмонов Т.Т., Курбонов К.Б.* 221

**ДОЗОВЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ПУЧКА ЭПИТЕПЛОВЫХ НЕЙТРОНОВ**

*Абдуллаева Г. А., Коблик Ю. Н., Кулабдуллаев Г. А.* 225

**ИЗУЧЕНИЕ ЭФФЕКТОВ ХОЛОДНОЙ ЯДЕРНОЙ МАТЕРИИ В ЭКСПЕРИМЕНТЕ ФЕНИКС**

*Д.О. Котов, Ю.Г. Рябов* 228

**ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕМПЕРАТУРНОЙ ЗАВИСИМОСТИ ПОТЕНЦИАЛА ЭЛЕКТРОННОГО ЭКРАНИРОВАНИЯ РЕАКЦИИ  $d(d,n){}^3\text{He}$  В ДЕЙТЕРИДАХ МЕТАЛЛОВ**

*Быстрицкий В. М., Быстрицкий Вит.М., Возняк Я., Гази С., Гуран Й., Дудкин Г. Н., Кобзев А.П., Нечаев Б. А., Падалко В. Н., Паржсицкий С. С., Пеньков Ф.М., Тулеушев Ю.Ж., Филиппов А.В., Филипович М.* 233

**МАСС-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ВЫХОДА ПРОДУКТОВ ДЕЛЕНИЯ  ${}^{239}\text{Pu}$  ТЕПЛОВЫМИ НЕЙТРОНАМИ**

*Абдуллаева Г.А., Коблик Ю.Н., Небесный А.Ф., Пикуль В.П.* 237

**НЕУПРУГОЕ РАССЕЯНИЕ ПРОТОНОВ НА ЯДРЕ  ${}^{15}\text{C}$  В ДИФРАКЦИОННОЙ ТЕОРИИ**

*Ибраева Е.Т., Жусупов М.А., Имамбеков О., Красовицкий П.М.* 240

**О ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТИ СООТНОШЕНИЯ ФРАНЧИНИ–РАДИКАТТИ К НАРУШАЮЩИМ ВИГНЕРОВСКУЮ SU(4)-СИММЕТРИЮ ФАКТОРАМ**

*Нурмухамедов А.М., Салихбаев У.С.* 245

<b>ОСОБЕННОСТИ ФРАГМЕНТАЦИИ ЯДЕР Au (10.7 А·ГэВ) и Pb (158 А·ГэВ) ВО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ С ЯДРАМИ ЭМУЛЬСИИ</b>	248
<i>Аргынова А.Х., Гайтинов А.Ш., Локтионов А.А., Скоробогатова В.И., Харчевников П.Б.</i>	
<b>ОТНОШЕНИЕ АСИМПТОТИЧЕСКИХ НОРМИРОВОЧНЫХ КОЭФФИЦИЕНТОВ СВЯЗАННЫХ СОСТОЯНИЙ НЕЙТРОНА И ПРОТОНА В СИММЕТРИЧНОМ ЯДРЕ <sup>10</sup>B ИЗ РЕАКЦИЙ <sup>10</sup>B(p,d)<sup>9</sup>B и <sup>9</sup>Be(d,n)<sup>10</sup>B</b>	250
<i>Артемов С.В., Ни Г.К., Каюмов М.А., Запаров Э.А.</i>	
<b>ОЦЕНКА ВКЛАДА НИЗКОЭНЕРГИЧНЫХ ЧАСТИЦ В ОБРАЗОВАНИЕ ГАЛО</b>	255
<i>Жунусбеков М.К., Застроженнова Н.Н., Новолодская О.А., Садыков Т.Х.</i>	
<b>ПОИСК ТЯЖЕЛЫХ НЕЙТРОННЫХ КЛАСТЕРОВ В ДЕЛЕНИИ ЯДЕР <sup>252</sup>Cf</b>	256
<i>Дудкин Г.Н., Гаррапацкий А.А., Падалко В.Н.</i>	
<b>ПОТЕНЦИАЛЬНАЯ ЭНЕРГИЯ ДЕЛЯЩЕГОСЯ ЯДРА В ТОЧКЕ РАЗРЫВА ДЛЯ РАЗНЫХ МОД ДЕЛЕНИЯ</b>	260
<i>Пикуль В.П., Коблик Ю.Н., Абдуллаева Г.А., Небесный А.Ф.</i>	
<b>СРАВНИТЕЛЬНЫЙ АНАЛИЗ УПРУГОГО РАССЕЯНИЯ ПРОТОНОВ НА ИЗОТОПАХ LI В ДИФРАКЦИОННОЙ ТЕОРИИ ГЛАУБЕРА</b>	263
<i>Ибраева Е.Т., Жусупов М.А., Имамбеков О., Прмантаева Б. А., Темирбаев А.</i>	
<b>УЖЕСТОЧЕНИЕ СПЕКТРА ВТОРИЧНЫХ ЧАСТИЦ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ В СТОЛКНОВЕНИЯХ ТЯЖЕЛЫХ ИОНОВ</b>	267
<i>Дьяченко А.Т., Гриднев К.А.</i>	
<b>УЧЕТ ОБОЛОЧЕЧНОЙ СТРУКТУРЫ СТАЛКИВАЮЩИХСЯ ЯДЕР В ПРОЦЕССЕ СЛИЯНИЯ-ДЕЛЕНИЯ</b>	271
<i>Литневский В.Л., Косенко Г.И., Иванюк Ф.А., Пашкевич В.В.</i>	
<b>ЭВОЛЮЦИЯ ВОЗБУЖДЕННОГО ФАЙЕРБОЛЛА ВО ВЗАИМОДЕЙСТВИЯХ ИОНОВ Au и Pb С ТЯЖЕЛЫМИ ЯДРАМИ ЭМУЛЬСИИ ПРИ ЭНЕРГИЯХ AGS и SPS УСКОРИТЕЛЕЙ</b>	275
<i>Аргынова А.Х., Гайтинов А.Ш., Локтионов А.А., Скоробогатова В.И., Харчевников П.Б.</i>	
<b>RADIATION ECOLOGY</b>	
<b>BACKGROUND RADIATION DOSES OBTAINED FOR RESIDENTS IN FUKUSHIMA, JAPAN USING ESR SIGNALS IN TOOTH ENAMEL</b>	280
<i>Toyoda S., Kondo A., Zumadilov K., Hoshi M., Miyazawa C.</i>	
<b>CONFIGURATION AND CALIBRATION OF THE WHOLE-BODY COUNTER AT FORSCHUNGSZENTRUM JUELICH</b>	282
<i>Schlaeger M.</i>	
<b>DEVELOPMENT OF NEW GEOCEMENT BINDERS BASED ON NATURAL MINERALS OF ARMENIA AND TECHNOLOGY OF LRW CONDITIONING INTO ECOLOGICALLY SAFE COMPOUNDS</b>	286
<i>G.M. Aleksanyan</i>	
<b>RADIOPROTECTIVE PROPERTIES OF HYPERICUM PERFORATUM</b>	290
<i>Shamilov E.N., Rzayeva I.A., Abdullayev A.S., Azizov I.V., Shamilli V.E.</i>	
<b>ВЛИЯНИЕ МГНОВЕННОГО ВОЗРАСТАНИЯ НЕЙТРОННОГО ПОТОКА В МОМЕНТ АВАРИИ НА РЕАКТОРЕ ЧЕТВЕРТОГО ЭНЕРГОБЛОКА ЧЕРНОБЫЛЬСКОЙ АЭС НА ИЗОТОПНЫЙ СОСТАВ УРАНА, ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА ЧАЭС</b>	293
<i>Садчиков В.И., Забродский В.Н., Бондарь Ю.И., Калинин В.Н.</i>	
<b>ГИДРОГЕОЭКОЛОГИЧЕСКИЕ УСЛОВИЯ РАЗМЕЩЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ И ТОКСИЧЕСКИ ОПАСНЫХ ОТХОДОВ ГОРНО-ДОБЫВАЮЩИХ ПРЕДПРИЯТИЙ КЫРГЫЗСТАНА</b>	297
<i>Атыкенова Э.Э.</i>	

<b>ДВОЙНОЙ МАСС-СПЕКТРАЛЬНЫЙ АНАЛИЗ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ТРИТИЯ</b>	
<i>Алдияров Н.У., Мить А.Г., Назаренко Л.М., Якушев Е.М.</i>	305
<b>ДОПУСТИМЫЕ РАДИАЦИОННЫЕ ПАРАМЕТРЫ ТЕРРИТОРИЙ ЛУГОПАСТБИЩНОГО ЗЕМЛЕДЕЛИЯ</b>	
<i>Глуценко В. Н., Кабдрахимова Г. Д., Кудряшев В. А., Тулеушев А. Ж.</i>	308
<b>ИЗМЕНЕНИЕ СОСТАВА И БИОМАССЫ ГАЛОФИТНЫХ ФИТОЦЕНОЗОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА В УСЛОВИЯХ ДЛИТЕЛЬНОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ МАЛЫХ ДОЗ ХРОНИЧЕСКОГО ИЗЛУЧЕНИЯ</b>	
<i>Плисак Р.П., Плисак С.В.</i>	312
<b>ИЗУЧЕНИЕ СОДЕРЖАНИЯ ТРИТИЯ В СНЕЖНОМ ПОКРОВЕ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»</b>	
<i>Турченко Д.В., Лукашенко С.Н., Айдарханов А.О., Ляхова О.Н.</i>	315
<b>ИНЖЕНЕРНО-ГЕОНОМИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ ЯДЕРНЫХ И РАДИАЦИОННЫХ ОБЪЕКТОВ НА ПЛАНЕТЕ ЗЕМЛЯ И ЕЕ СУБЧАСТЯХ В СВЯЗИ С ОЦЕНКОЙ РИСКОВ ЭКОЛОГИЧЕСКИХ АВАРИЙ (АСПЕКТЫ КАТАСТРОФОВЕДЕНИЯ)</b>	
<i>Усупаев Ш.Э., Атыкенова Э.Э.</i>	317
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ МЕХАНИЗМОВ ФОРМИРОВАНИЯ ПОВЕРХНОСТНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПОЧВОГРУНТОВ И ДОННЫХ ОТЛОЖЕНИЙ В ЗОНЕ РЕКИ ШАГАН</b>	
<i>Айдарханов А.О., Лукашенко С.Н., Субботин С.Б., Яковенко Ю.Ю.</i>	335
<b>К ВОПРОСУ РЕКОНСТРУКЦИИ ДОЗ НАСЕЛЕНИЯ ПРОЖИВАЮЩЕГО В ЗОНЕ ВЛИЯНИЯ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ЯДЕРНОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА</b>	
<i>Лукашенко С.Н., Галич Б.В., Битенова М.М., Брянцева Н.В., Каширский В.В., Минкенова К.С., Мамырбаева А.Н., Каримбаева К.С., Мецержакова А.В., Жадыранова А.А., <u>Тивоваров С.П.</u>, Рухин А.Б., Чередниченко О.Г.</i>	339
<b>КАРТОГРАФИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ</b>	
<i>Ю.А. Израэль, В.В. Снакин, Д.А. Манзон</i>	343
<b>О МАТЕРИАЛАХ ДЛЯ СПЕЦИАЛЬНОЙ РАДИАЦИОННО-ЗАЩИТНОЙ ОДЕЖДЫ ПОЖАРНЫХ НА АЭС И ДРУГИХ РАДИАЦИОННО-ОПАСНЫХ ОБЪЕКТАХ</b>	
<i>Бенецкий Б.А., Лифанов М.Н.</i>	346
<b>ОПРЕДЕЛЕНИЕ ДОПУСТИМЫХ РАДИАЦИОННЫХ ПАРАМЕТРОВ ТЕРРИТОРИЙ</b>	
<i>Глуценко В. Н., Кабдрахимова Г. Д., Кудряшев В. А., Тулеушев А. Ж.</i>	349
<b>ОСОБЕННОСТИ АККУМУЛЯЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ В ОСНОВНЫХ КОМПОНЕНТАХ ЛУГОВЫХ БИОГЕОЦЕНОЗОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА</b>	
<i>Плисак Р.П., Плисак С.В.</i>	353
<b>ОСОБЕННОСТИ НАКОПЛЕНИЯ ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ СТЕПНЫМИ РАСТЕНИЯМИ НА ПЛОЩАДКЕ «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ» БЫВШЕГО СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА</b>	
<i>Ларионова Н.В., Лукашенко С.Н., Кундузбаева А.Е., Глуценко В.Н., Коваль А.П., Иванова А.Р., Келлер С.А.</i>	355
<b>ОСОБЕННОСТИ НАКОПЛЕНИЯ ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ СЕЛЬСКОХОЗЯЙСТВЕННЫМИ КУЛЬТУРАМИ В РАЙОНЕ ПРОВЕДЕНИЯ НАЗЕМНЫХ ЯДЕРНЫХ ИСПЫТАНИЙ (ПЛ. «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ»)</b>	
<i>Кожыханов Т.Е., Лукашенко С.Н., Паницкий А.В., Ларионова Н.В.</i>	358
<b>ОЦЕНКА КОМПЛЕКСНОГО ВОЗДЕЙСТВИЯ РАДИОЭКОЛОГИЧЕСКИХ ФАКТОРОВ НА ФОРМИРОВАНИЕ СТРУКТУРЫ И БИОМАССЫ КСЕРОФИТНЫХ СООБЩЕСТВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ПОЛИГОНА</b>	
<i>Плисак Р.П., Плисак С.В.</i>	362
<b>ОЦЕНКА РИСКА ВОЗДУШНОГО ПЕРЕНОСА ТЕХНОГЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ С</b>	

<b>ПРЕДПРИЯТИЙ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВНОГО ЦИКЛА ЧЕЛЯБИНСКОЙ ОБЛАСТИ НА ТЕРРИТОРИЮ СВЕРДЛОВСКОЙ ОБЛАСТИ</b>	
<i>Коржавин А.В., Трапезников А.В., Трапезникова В.Н., Лисовских В.Г., Николкин В.Н.</i>	364
<b>ПАСПОРТИЗАЦИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ</b>	
<i>Покровский И.В., Бутурлин В.И., Пономаренко А.В.</i>	372
<b>ПЕРСИСТЕНТНОЕ ПОСЛЕСВЕЧЕНИЕ В <math>\beta</math>-ОБЛУЧЕННЫХ МОНОКРИСТАЛЛАХ НИТРИДА АЛЮМИНИЯ</b>	
<i>Спиридонов Д.М., Вохминцев А.С., Вайнштейн И.А.</i>	379
<b>ПЛУТОНИЙ В ПОЧВЕННО-РАСТИТЕЛЬНОМ ПОКРОВЕ ГОЛОВНОЙ ЧАСТИ ВОСТОЧНО-УРАЛЬСКОГО РАДИОАКТИВНОГО СЛЕДА</b>	
<i>Михайловская Л.Н., Лобанова Л.В., Рукавишников О.В., Глухова Е.В.</i>	382
<b>ПОДЗЕМНАЯ ГАЗИФИКАЦИЯ В МЕСТАХ ПРОВЕДЕНИЯ ПОДЗЕМНЫХ ЯДЕРНЫХ ВЗРЫВОВ (ПЯВ) НА БЫВШЕМ СЕМИПАЛАТИНСКОМ ИСПЫТАТЕЛЬНОМ ПОЛИГОНЕ (СИП)</b>	
<i>Лукашенко С.Н., Субботин С.Б., Романенко В.В.</i>	387
<b>ПРЕЖДЕВРЕМЕННОЕ СТАРЕНИЕ ПРИ РАДИАЦИОННЫХ ПОРАЖЕНИЯХ ЧЕЛОВЕКА И ФЕНОМЕН ГЕТЕРОХРОМАТИЗАЦИИ КЛЕТОК ОРГАНИЗМА</b>	
<i>Ильинских Н.Н., Юркин А.Ю., Ильинских Е.Н., Ильинских И.Н.</i>	391
<b>РАДИОЭКОЛОГИЯ В РАЗВИТИИ ТОПЛИВНО-ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО КОМПЛЕКСА РОССИИ</b>	
<i>Глухов Г.Г., Чикова И.В., Ляхова В.А., Чуданова А.Л.</i>	394
<b>РАЗВИТИЕ ЭКСПЕРТНЫХ РАБОТ В ИЯФ НЯЦ РК</b>	
<i>Тулешев А.Ж., Чаков П.В., Солодухин В.П., Глуценко В.Н., Позняк В.Л., Быченко А.Н., Желтов Д.А., Якушев Е.М., Назаренко А.М.</i>	398
<b>СОСТОЯНИЕ И ПРИОРИТЕТЫ РАЗВИТИЯ ТЕХНОЛОГИЙ МОНИТОРИНГА РАДИАЦИОННО-ЭКОЛОГИЧЕСКОЙ ОБСТАНОВКИ И ЗАГРЯЗНЕНИЯ ВРЕДНЫМИ ХИМИЧЕСКИМИ СОЕДИНЕНИЯМИ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ В РАЙОНЕ СИП</b>	
<i>Артемов О.И., Стебельков В.А., Газиев Я.И., Гордеев С.К., Игнатенко Г.К., Газиев И.Я.</i>	404
<b>ТЕРМОЛУЧЕВАЯ ОБРАБОТКА ТВЕРДОТЕЛЬНОГО ДЕТЕКТОРА ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ НА ОСНОВЕ ОКСИДА АЛЮМИНИЯ</b>	
<i>Соловьев С.В., Мильман И.И., Моисейкин Е.В., Сурдо А.И.</i>	409
<b>ТРАНСУРАНОВЫЕ ЭЛЕМЕНТЫ В ОРГАНИЗМЕ СЕЛЬСКОХОЗЯЙСТВЕННЫХ ЖИВОТНЫХ ПРИ ИХ РАЗВЕДЕНИИ В УСЛОВИЯХ ИСПЫТАТЕЛЬНОЙ ПЛОЩАДКИ "ДЕГЕЛЕН"</b>	
<i>Паницкий А.В., Байгазинов Ж.А., Лукашенко С.Н., Коваль А.В.</i>	412
<b>ТРИТИЙ КАК ИНДИКАТОР МЕСТ ПРОВЕДЕНИЯ ЯДЕРНЫХ ИСПЫТНИЙ</b>	
<i>Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В., Субботин С.Б.</i>	418
<b>ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ НЕКОТОРЫХ УЧАСТКОВ ТЕРРИТОРИИ СИП</b>	
<i>Кундузбаева А.Е., Кабдыракова А.М., Лукашенко С.Н., Магашева Р.Ю.</i>	421
<b>ХАРАКТЕР И УРОВНИ РАДИОНУКЛИДНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ПЛОЩАДКИ «ОПЫТНОЕ ПОЛЕ» СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА</b>	
<i>Мошков А.С., Лукашенко С.Н., Яковенко Ю.Ю., Стрильчук Ю.Г., Коровина О.Ю., Яковенко А.М.</i>	423
<b>NUCLEAR AND RADIATION METHODS IN MEDICINE AND INDUSTRY</b>	
<b>NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS OF Ca, Cl, Mg, Na, and P CONTENTS IN THE HUMAN RETICULOENDOTHELIAL SARCOMA</b>	
<i>Zaichick S., Zaichick V.</i>	429



<b>PREPARATION OF YTTRIUM MICROSPHERES BY GELATION OF AQUEOUS SOLUTION CONTAINING YTTRIUM IONS IN THE SILICON OIL</b>	432
<i>Garibov A.A., Ghahramani M.R., Agayev T.N.</i>	
<b>RELATIONSHIP BETWEEN Ca, Cl, K, Mg, Mn, Na, P, and Sr CONTENTS IN THE INTACT CORTICAL BONE OF HUMAN FEMORAL NECK INVESTIGATED BY NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS</b>	435
<i>Zaichick S., Zaichick V.</i>	
<b>АДСОРБЦИЯ РАДИОНУКЛИДА КОБАЛЬТ-57 НА КИСЛОТНО-АКТИВИРОВАННОМ БЕНТОНИТЕ</b>	442
<i>Егамедиев С.Х, Нурбаева Д.А., Саидова З.А, Таитемирова Н. Ж.</i>	
<b>ВЛИЯНИЕ ИЗОТЕРМИЧЕСКОГО ОТЖИГА НА ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ К ЭТАНОЛУ ТОНКИХ ПЛЕНОК SnO<sub>2</sub> ЛЕГИРОВАННЫХ ФТОРОМ</b>	445
<i>Дмитриева Е.А.</i>	
<b>ВОЗМОЖНОСТЬ ПРИМЕНЕНИЯ ТЕПЛОВИЗИОННОЙ ДИАГНОСТИКИ ДЛЯ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ГЕОМЕТРИЧЕСКОГО ПРОФИЛЯ И ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ИМПУЛЬСНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА</b>	449
<i>Сазонов Р.В., Пушкарёв А.И., Пономарёв Д.В., Холодная Г.Е., Исакова Ю.И.</i>	
<b>ВЫДЕЛЕНИЕ БЕЗНОСИТЕЛЬНОГО LU-177 ИЗ ИТТЕРБИЯ, ОБЛУЧЕННОГО НА РЕАКТОРЕ ВВР-К</b>	454
<i>Чакров П.В., Чакрова Е.Т., Медведева З.В., Банных В.И., Гурин А.Н., Глуценко Н.В.</i>	
<b>ИЗУЧЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ТЕМПЕРАТУРЫ И ДЕФЕКТОВ НА ПРОЦЕССЫ НАНОСТРУКТУРИЗАЦИИ ЯДЕРНЫХ СПИН-СИСТЕМ В КРИСТАЛЛАХ</b>	457
<i>Ермаханов М.Е., Битенбаев М.И., Жанабаев З.Ж., Поляков А.И.</i>	
<b>ИМПУЛЬСНЫЙ ПЛАЗМОХИМИЧЕСКИЙ СИНТЕЗ SiO<sub>2</sub>: ВРЕМЕННАЯ ОЦЕНКА ПРОЦЕССА И СВОЙСТВА НАНОПОРОШКА</b>	460
<i>Сазонов Р.В., Ремнёв Г.Е., Пономарёв Д.В., Кайканов М.И., Холодная Г.Е.</i>	
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ОБЛУЧЕНИЯ ЭПИТЕПЛОВЫМИ НЕЙТРОНАМИ НА СВЯЗЫВАЮЩУЮ СПОСОБНОСТЬ БЕЛКОВ СЫВОРОТКИ КРОВИ</b>	465
<i>Ким А.А., Джураева Г.Т., Коблик Ю.Н., Кулабдуллаев Г.А., Абдуллаева Г.А., Мавлянов И.Р., Шукуров Б.В.</i>	
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ НЕОДНОРОДНОСТИ ГЕНЕРАЦИИ МИП В ДИОДЕ С МАГНИТНОЙ САМОИЗОЛЯЦИЕЙ ПО ТЕПЛОВОМУ ОТПЕЧАТКУ НА МИШЕНИ</b>	469
<i>Исакова Ю.И., Холодная Г.Е.</i>	
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ТЕЛЕПОРТАЦИИ КВАНТОВЫХ СОСТОЯНИЙ В НЕОДНОРОДНЫХ НАНОКЛАСТЕРИЗОВАННЫХ СПИНОВЫХ СТРУКТУРАХ.</b>	473
<i>Эбель Д.В., Битенбаев М.И., Поляков А.И., Алмасбеков Н.Е.</i>	
<b>ИССЛЕДОВАНИЕ СОДЕРЖАНИЙ МАКРО- И МИКРОЭЛЕМЕНТОВ В ПЛОДООВОЩНОЙ ПРОДУКЦИИ, ЛЕКАРСТВЕННЫХ ТРАВАХ И СБОРАХ</b>	477
<i>Бакиев С.А., Кульджанов Б.К., Рахманов Ж., Осинская Н.С., Ахмедов Я., Якубов О.</i>	
<b>КЛИНИЧЕСКИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ ПРЕПАРАТА «НАТРИЯ ПЕРТЕХНЕТАТ-<sup>99m</sup>Tc, РАСТВОР ДЛЯ ИНЪЕКЦИЙ» ИЗ ТРАНСПОРТИРУЕМОГО ГЕЛЬ-ГЕНЕРАТОРА ПРОИЗВОДСТВА ИЯФ НЯЦ РК</b>	491
<i>И.Т.Тажединов, О.Г. Хан, Е.Т. Чакрова, В.И. Банных</i>	
<b>КЛИНИЧЕСКОЕ ИССЛЕДОВАНИЕ РАДИОФАРМАЦЕВТИЧЕСКИХ ПРЕПАРАТОВ «ДТПА-<sup>99m</sup>Tc, РЕАГЕНТ » И «НАТРИЯ -О-ЙОДГИПСУРАТ, <sup>131</sup>I РАСТВОР ДЛЯ ИНЪЕКЦИЙ» ПРОИЗВОДСТВА ИЯФ НЯЦ РК ДЛЯ ДИНАМИЧЕСКОЙ СЦИНТИГРАФИИ ПОЧЕК</b>	495
<i>И.Т. Тажединов, Н.С. Нургалиев, М.С. Косанов, Б.Ж. Кенжебаев, Б.Т. Онгарбаев, Е.Т. Чакрова, В.И. Банных, А.В. Мясищев, С.У. Даулбаев, В.М. Чумикова.</i>	

<b>НЕЙТРОННО-АКТИВАЦИОННЫЙ АНАЛИЗ БОЛЬШИХ ОБРАЗЦОВ НЕФТИ</b>	
<i>В.Г.Зиновьев, П.А.Сушков, Г.И.Шуляк, Т.М.Тюкавина</i>	499
<b>ОПРЕДЕЛЕНИЕ ТОЛЩИН ДЕТЕКТОРОВ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ СПЛОШНОГО <math>\beta</math>-СПЕКТРА</b>	
<i>Артемов С.В., Радюк Г.А., Караходжаев А.А., Абдуллаева Я.С., Якушев В.П.</i>	503
<b>ОЧИСТКА И СТЕРИЛИЗАЦИЯ ПРОМЫШЛЕННО-БЫТОВЫХ СТОЧНЫХ ВОД ИМПУЛЬСНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ НАНОСЕКУНДНОЙ ДЛИТЕЛЬНОСТИ</b>	
<i>Ремнев Г.Е., Степанов А.В., Войно Д.А., Егоров И.С., Кайканов М.И., Маслов А.С., Меринова Л.Р., Попов А.В., Сярз Б.А., Шиян Л.Н.</i>	506
<b>ПРОИЗВОДСТВО ЗАКРЫТЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ИСТОЧНИКОВ ДЛЯ РЕНТГЕНРАДИОМЕТРИЧЕСКОГО АНАЛИЗА</b>	
<i>Егамедиев С.Х.</i>	510
<b>РАЗМЕРНЫЙ ЭФФЕКТ ПРИ ФОРМИРОВАНИИ НИТРИДОВ ТИТАНА И НИОБИЯ</b>	
<i>Тулеушев А.Ж., Тулеушев Ю.Ж., Володин В.Н., Жаканбаев Е.А.</i>	513
<b>РАЗРАБОТКА ГИДРОТЕРМАЛЬНОГО МЕТОДА СИНТЕЗА НАНОПЛЕНОК ДЛЯ СОЗДАНИЯ СОЛНЕЧНЫХ ЭЛЕМЕНТОВ</b>	
<i>Мухамедишина Д.М., Доля Н.А., Мить К.А., Глазман В.Б.</i>	517
<b>РАЗРАБОТКА МЕТОДА КОНТРОЛЯ ГЕРМЕТИЧНОСТИ ЗАКРЫТЫХ ИСТОЧНИКОВ НА ОСНОВЕ РАДИОНУКЛИДОВ <math>^{57}\text{CO}</math> И <math>^{60}\text{CO}</math></b>	
<i>Егамедиев С.Х., Нурбаева Д.А., Саидова З.А., Таитемирова Н.Ж.</i>	522
<b>РАССЕЯНИЕ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН НА ТРЕКАХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ В ВЕЩЕСТВЕ</b>	
<i>Алмалиев А.Н., Баткин И.С., Долгополов М.А., Копытин И.В., Лукин П.В., Чуракова Т.А.</i>	524
<b>СВЕРХСТРУКТУРЫ В СПЛАВАХ ТАНТАЛ-АЛЮМИНИЙ</b>	
<i>Володин В.Н., Тулеушев Ю.Ж.</i>	526
<b>СТРУКТУРА И УСТАЛОСТНАЯ ДОЛГОВЕЧНОСТЬ СТАЛИ 20Х13, ОБРАБОТАННОЙ ВЫСОКОИНТЕНСИВНЫМ ЭЛЕКТРОННЫМ ПУЧКОМ</b>	
<i>Иванов Ю.Ф., Колубаева Ю.А., Тересов А.Д., Громов В.Е., Коваль Н.Н.</i>	530
<b>ТЕПЛОВИЗИОННАЯ ДИАГНОСТИКА ГЕОМЕТРИЧЕСКОГО ПРОФИЛЯ И ЭНЕРГЕТИЧЕСКОГО СПЕКТРА ИМПУЛЬСНОГО ЭЛЕКТРОННОГО ПУЧКА</b>	
<i>Сазонов Р.В., Пономарёв Д.В., Холодная Г.Е., Исакова Ю.И.</i>	534
<b>ТЕРМОГЕНЕРАЦИЯ АКУСТИЧЕСКИХ ВОЛН ПРИ ВЗАИМОДЕЙСТВИИ ТЯЖЕЛЫХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ С БИОЛОГИЧЕСКИМИ ТКАНЯМИ</b>	
<i>Алмалиев А.Н., Баткин И.С., Долгополов М.А., Копытин И.В., Лукин П.В., Чуракова Т.А.</i>	539
<b>ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ ГЕНЕРАТОР МОЩНЫХ ИОННЫХ ПУЧКОВ ТЕМП-4М ДЛЯ ПУЧКОВО-ПЛАЗМЕННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ</b>	
<i>А.И. Пушкарев, Ю.И. Исакова, В.И. Гусельников</i>	541
<b>ФИЗИКА И ТЕХНОЛОГИЯ ПОЛУЧЕНИЯ I-125 В ПЕТЛЕВОМ УСТРОЙСТВЕ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО ЯДЕРНОГО РЕАКТОРА</b>	
<i>Зукау В.В., Глухов Г.Г.</i>	545
<b>ЧАСТОТНЫЙ ИМПУЛЬСНЫЙ ЭЛЕКТРОННЫЙ УСКОРИТЕЛЬ ДЛЯ РАДИАЦИОННЫХ ТЕХНОЛОГИЙ</b>	
<i>Ремнев Г.Е., Егоров И.С., Кайканов М.И., Канаев Г.Г., Луконин Е.И., Нашилевский А.В., Степанов А.В.</i>	549
<b>ЭПР-ОТКЛИК <math>\gamma</math> – ОБЛУЧЕННЫХ ВЫСУШЕННЫХ ОРГАНОВ ПЛОДОВ И ЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ПЛОДОВ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ УФ - СВЕТОМ</b>	
<i>Рухин А.Б., Жакпаров Р.К., Бердибекова Г.Н.</i>	555

*Alphabetical index*

Abdullayev A.S.....	290	Банных В.И.....	454,491,495
Agayev T.N.....	19,22,432	Барсуков Н.И.....	89
Aksenova T.I.....	12	Баткин И.С.....	524,539
Aleksanyan G.M.....	286	Батырбеков Э.Г.....	163
Azizov I.V.....	290	Беденко С.В.....	57
Barsukov N.I.....	8,25,31	Бенецкий Б.А.....	346
Chikhray Ye.V.....	25	Бердибекова Г.Н.....	555
Dzhurakhalov A.A.....	33	Битенбаев М.И.....	457,473
Evubov K.T.....	19,22	Битенова М.М.....	339
Garibov A.A.....	19,22,432	Болатханкызы Д.....	181
Ghahramani M.R.....	19,432	Бондарь Ю.И.....	293
Gordienko Yu.N.....	8,25,31	Боос Э.Г.....	202
Hashemi M.Y.....	19	Брянцева Н.В.....	339
Hoshi M.....	280	Бутурлин В.И.....	372
Kenzhin E.A.....	8,25,31	Быстрицкий В. М.....	233
Khromushin I.V.....	12	Быстрицкий Вит.М.....	233
Kondo A.....	280	Быченко А.Н.....	398
Kulsartov T.V.....	8,25,31	Вайнштейн И.А.....	379
Kulsartova A.V.....	8,31	Варлачев В.А.....	55
Mansimov Z.A.....	22	Ветров В.А.....	158
Miyazawa C.....	280	Витюк Г.А.....	141,174
Mukashev K.M.....	33	Возняк Я.....	233
Munasbaeva K.K.....	12	Войно Д.А.....	506
Otuka N.....	191	Володин В.Н.....	513,526
Ponkratov Yu.V.....	8,25,31	Вохминцев А.С.....	379
Rzayeva I.A.....	290	Вурим А.Д.....	141
Sadvakassova A.O.....	8,25,31	Гази С.....	233
Schlaeger M.....	282	Газиев И.Я.....	404
Semkova V.....	191	Газиев Я.И.....	404
Shamilov E.N.....	290	Гайдайчук А.В.....	67,141
Shamilli V.E.....	290	Гайгинов А.Ш.....	248,275
Simakov S.P.....	191	Галич Б.В.....	339
Tazhibaeva I.L.....	8,25,31	Ганеев Г.З.....	179
Toyoda S.....	280	Гаппаров А.....	121,155
Tulubaev Ye.Yu.....	8,25,31	Гарапацкий А.А.....	256
Tuseyev T.....	16	Глазман В.Б.....	181,517
Umarov F. F.....	33	Глухов Г.Г.....	394,545
Zaichick S.....	429,435	Глухова Е.В.....	382
Zaichick V.....	429,435	Глущенко В. Н.....	308,349,355,398
Zerkin V.....	191	Глущенко Н.В.....	454
Zhotabaev Zh. R.....	12	Гордеев С.К.....	404
Zumadilov K.....	280	Гордиенко Ю.Н.....	89
Абдукадырова И.Х.....	42,69,125,133	Горцев А.П.....	62
Абдуллаева Г.А.....	225,237,260,465	Графутин В.И.....	49
Абдуллаева Я.С.....	503	Гриднев К.А.....	267
Айдарханов А.О.....	315,335	Громов В.Е.....	530
Аксенова Т.И.....	107	Губайдулин И.М.....	57
Алдияров Н.У.....	213,305	Гуран Й.....	233
Алейников Ю.В.....	75,128,141	Гурин А.Н.....	454
Аликулов Ш.А.....	125	Гусев М.Н.....	146
Алмалиев А.Н.....	524,539	Гусельников В.И.....	541
Алмасбеков Н.Е.....	473	Даулбаев С.У.....	495
Алонцева Д.Л.....	103	Дегтярев В.В.....	107
Аргынова А.Х.....	248,275	Дерявко И.И.....	84,137,152,185
Артемов С.В.....	195,250,503	Джураева Г.Т.....	465
Артемьев О.И.....	404	Диков А.С.....	58,62
Атыкенова Э.Э.....	297,317	Дмитриева Е.А.....	445
Ахмедов Я.....	477	Добаткин С.В.....	146
Ахметов Е.З.....	213	Долгополов М.А.....	524,539
Ахметов К.М.....	181	Доля Н.А.....	517
Байгазинов Ж.А.....	412	Дудкин Г.Н.....	233,256
Байтелесов С.А.....	125	Дьяченко А.Т.....	267
Бакланов В.В.....	137,185	Егамедиев С.Х.....	442,510,522
Бакиев С.А.....	477	Егоров И.С.....	506,549

*Alphabetical index*

Елеуов М.А.....	181	Колубаева Ю.А.....	530
Емец Е.Г.....	55	Копытин И.В.....	524,539
Ермаханов М.Е.....	457	Коржавин А.В.....	364
Жаканбаев Е.А.....	513	Коровина О.Ю.....	423
Жакпаров Р.К.....	555	Короткий А.И.....	80
Жанабаев З.Ж.....	457	Косанов М.С.....	495
Жадыранова А.А.....	339	Косенко Г.И.....	271
Жанкадамова А.М.....	94,98	Котов В.М.....	174
Желтов Д.А.....	398	Котов Д.О.....	228
Жотабаев Ж.Р.....	107,141	Коянбаев Е.Т.....	137
Жумадилова У.А.....	75	Кравченко Н.И.....	57
Жунусбеков М.К.....	255	Красовицкий П.М.....	240
Жураев О.Ш.....	195	Кудряшев В. А.....	308,349
Жусупов М.А.....	240,263	Кукушкин И.М.....	137,185
Забродский В.Н.....	293	Кулабдуллаев Г.А.....	225,465
Зайцев Д.Н.....	152	Кулжанов Д.Ш.....	152
Запаров Э.А.....	250	Кульджанов Б.К.....	477
Застрожнова Н.Н.....	255	Кульсартов Т.В.....	89
Зиновьев В.Г.....	499	Кундузбаева А.Е.....	355,421
Зуев В.А.....	152	Курбанов А.М.....	36,121,155
Зукау В.В.....	545	Курбонов К.Б.....	221
Ибраева Е.Т.....	198,240,263	Ларионова Н.В.....	355,358,418
Иванова А.Р.....	355	Линник С.А.....	67
Иванов Ю.Ф.....	530	Лисовских В.Г.....	364
Иванюк Ф. А.....	271	Литневский В.Л.....	271
Игнатенко Г.К.....	404	Лифанов М.Н.....	346
Избасаров М.....	202	Лобанова Л.В.....	382
Избасханова А.Т.....	71	Локтионов А.Л.....	248,275
Израэль Ю.А.....	343	Лукашенко С.Н.....	315,335,339,355,358,387,412, 418,421,423
Ильинских Е.Н.....	391	Лукин П.В.....	524,539
Ильинских И.Н.....	391	Луконин Е.И.....	549
Ильинских Н.Н.....	391	Ляхова В.А.....	394
Имамбеков О.....	240,263	Ляхова О.Н.....	315,418
Иркимбеков Р.А.....	174	Мавлянов И.Р.....	465
Исакова Ю.И.....	449,469,534,541	Магашева Р.Ю.....	421
Кабдрахимова Г. Д.....	308,349	Максимкин О.П.....	146
Кабдыракова А.М.....	421	Мамырбаева А.Н.....	339
Кадыржанов К.К.....	94,98	Манзон Д.А.....	343
Казанцев С.И.....	221	Маслов А.С.....	506
Казбекова Б.К.....	135	Медведева З.В.....	454
Кайканов М.И.....	460,506,549	Меринова Л.Р.....	506
Калдыбаева Д.Н.....	213	Мещерякова А.В.....	339
Калинин В.Н.....	293	Мильман И.И.....	409
Канаев Г.Г.....	549	Минкенова К.С.....	339
Караходжаев А.А.....	195,503	Мить А.Г.....	305
Каримбаева К.С.....	339	Мить К.А.....	517
Карташов В.М.....	206,213	Михайловская Л.Н.....	382
Касаева А.Ж.....	135	Моисейкин Е.В.....	409
Каширский В.В.....	339	Мошков А.С.....	423
Каюмов М.А.....	195,250	Мунасбаева К.К.....	107
Келлер С.А.....	355	Мухамедшина Д.М.....	517
Кенжебаев Б.Ж.....	495	Мухаметжарова Р.А.....	174
Кенжин Е.А.....	71,89	Мясищев А.В.....	495
Киккарин С.М.....	181	Назаренко А.М.....	398
Ким А.А.....	465	Назаренко Л.М.....	305
Киреев В.В.....	58,62	Нашилевский А.В.....	549
Кислицин С.Б.....	58,62,179	Небесный А.Ф.....	237,260
Кобзев А.П.....	233	Нестерова А.Ю.....	58,62
Коблик Ю.Н.....	221,225,237,260,465	Нечаев Б.А.....	233
Коваль А.В.....	412,530	Ни Г.К.....	250
Коваль А.П.....	355	Николкин В.Н.....	364
Коваль Н.Н.....	530	Новолодская О.А.....	255
Кожуханов Т.Е.....	358	Нурбаева Д.А.....	442,522
Колосков В.М.....	80		

*Alphabetical index*

Нургалиев Н.С.....	495	Тажединов И.Т.....	491,495
Нуритдинов И.....	121,155	Тажибаева И.Л.....	89
Нурлыбаев К.....	39	Тарасенко Е.В.....	185
Нурмухамедов А.М.....	216,245	Таштемирова Н. Ж.....	442,522
Онгарбаев Б.Т.....	495	Темирралиев Т.....	202
Осинская Н.С.....	477	Темирбаев А.....	198,263
Падалко В.Н.....	233,256	Тересов А.Д.....	530
Паницкий А.В.....	358,412	Тлеусова И.....	198
Паржицкий С.С.....	233	Токмолдин С.Ж.....	117,181
Пашкевич В.В.....	271	Токтаганов М.О.....	129
Пахниц В.А.....	128,141	Трапезников А.В.....	364
Пеньков Ф.М.....	233	Трапезникова В.Н.....	364
Пивоваров С.П.....	339	Тулеушев А. Ж.....	308,349,398,513
Пикуль В.П.....	237,260	Тулеушев Ю.Ж.....	233,513,526
Плисак Р.П.....	312,353,362	Тулубаев Е.Ю.....	89
Плисак С.В.....	312,353,362	Турченко Д.В.....	315
Позняк В.Л.....	398	Тусеев Т.Т.....	107
Покровский И.В.....	372	Тыныштыкбаев К.Б.....	117,181
Поляков А.И.....	457,473	Тюкавина Т.М.....	499
Понкратов Ю.В.....	89	Ударцев С.В.....	137,152
Пономаренко А.В.....	372	Усупаев Ш.Э.....	317
Пономарёв Д.В.....	449,460,534	Уханов С.В.....	163
Попов А.В.....	506	Филиппов А.В.....	233
Попов Ю.А.....	128	Филипович М.....	233
Прмантаева Б.А.....	198,263	Хан О.Г.....	491
Прозорова И.В.....	75,128	Харчевников П.Б.....	248,275
Прокопьев Е.П.....	49	Хидиров И.....	111
Пушкарёв А.И.....	449,541	Холодная Г.Е.....	449,460,469,534
Радюк Г.А.....	503	Хромушин И.В.....	107
Рақыметов Б.А.....	117,181	Худайкулов И.Х.....	195
Рахманов Ж.....	477	Цай Е.Е.....	163
Рахмонов Т.Т.....	221	Цай К.В.....	146
Ремнёв Г.Е.....	460,506,549	Чакрова Е.Т.....	454,491,495
Романенко В.В.....	387	Чакров П.В.....	398,454
Рукавишникова О.В.....	382	Чебакова Е.А.....	210
Русакова А.В.....	107	Чектыбаев Б.Ж.....	45
Русаков В.С.....	94,98	Чередниченко О.Г.....	339
Рухин А.Б.....	555,339	Черных Н.И.....	80
Рябкин Ю.А.....	117,181	Чикова И.В.....	394
Рябов Ю.Г.....	228	Чуданова А.Л.....	394
Садвакасова А.О.....	89	Чумикова В.М.....	495
Садчиков В.И.....	293	Чуракова Т.А.....	524,539
Садыков А.Д.....	45	Шаповалов Г.В.....	45
Садыков Т.Х.....	255	Шиян Л.Н.....	506
Саидова З.А.....	442,522	Шуляк Г.И.....	499
Сазонов Р.В.....	449,460,534	Шукуров Б.В.....	465
Салихбаев У.С.....	216,245	Шумайлова О.В.....	45
Самойлов В.В.....	202	Эбель Д.В.....	473
Сатпаева З.А.....	213	Юркин А.Ю.....	391
Скоробогатова В.И.....	248,275	Яковенко А.М.....	423
Снакин В.В.....	343	Яковенко Ю.Ю.....	335,423
Соловьев С.В.....	409	Якубов О.....	477
Солодовников Е.С.....	55	Якушев В.П.....	195,503
Солодухин В.П.....	398	Якушев Е.М.....	305,398
Спиридонов Д.М.....	379	Яровчук А.В.....	146
Стебельков В.А.....	404		
Степанов А.В.....	506,549		
Стрильчук Ю.Г.....	423		
Субботин С.Б.....	335,387,418		
Субботин Ю.Н.....	80		
Сушков П.А.....	499		
Сухоруков И.А.....	94,98		
Сюрдо А.И.....	409		
Сярг Б.А.....	506		