

ISSN 1729-7516

Вестник НЯЦ РК

ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ
НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

ВЫПУСК 2(46), ИЮНЬ 2011

Издается с января 2000 г.

ГЛАВНЫЙ РЕДАКТОР – д.ф.-м.н. КАДЫРЖАНОВ К.К.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ: д.ф.-м.н. БАТЫРБЕКОВ Э.Г. – заместитель главного редактора,
д.ф.-м.н. ЖОТАБАЕВ Ж.Р. – заместитель главного редактора, к.х.н. АРТЕМЬЕВ О.И., д.т.н. БАТЫРБЕКОВ Г.А.,
БЕЛЯШОВА Н.Н., к.ф.-м.н. ВОЛКОВА Т.В., д.ф.-м.н., к.б.н. КАДЫРОВА Н.Ж., к.ф.-м.н. КЕНЖИН Е.А.,
д.ф.-м.н. КОПНИЧЕВ Ю.Ф., д.г.-м.н. КРАСНОПЕРОВ В.А., ЛУКАШЕНКО С.Н., д.ф.-м.н. МИХАЙЛОВА Н.Н.,
д.т.н. МУКУШЕВА М.К., д.г.-м.н. НУРМАГАМБЕТОВ А.Н., д.б.н. ПАНИН М.С., к.г.-м.н. ПОДГОРНАЯ Л.Е.,
д.т.н. САТОВ М.Ж., д.ф.-м.н. СОЛОДУХИН В.П., к.т.н. ТУЛЕУШЕВ А.Ж.

ҚР ҰЯО Жаршысы

ҚАЗАҚСТАН РЕСПУБЛИКАСЫ ҰЛТТЫҚ ЯДРОЛЫҚ ОРТАЛЫҒЫНЫҢ
МЕРЗІМДІК ҒЫЛЫМИ-ТЕХНИКАЛЫҚ ЖУРНАЛЫ

2(46) ШЫҒАРЫМ, МАУСЫМ, 2011 ЖЫЛ

NNC RK Bulletin

RESEARCH AND TECHNOLOGY REVIEW
NATIONAL NUCLEAR CENTER OF THE REPUBLIC OF KAZAKHSTAN

ISSUE 2(46), JUNE 2011

Сообщаем Вам, что периодический научно-технический журнал "Вестник НЯЦ РК", решением Комитета по надзору и аттестации в сфере науки и образования включен в перечень изданий, рекомендованных для публикации материалов кандидатских и докторских диссертаций:

- по физико-математическим наукам,
- по специальности 25.00.00 – наука о Земле.

СОДЕРЖАНИЕ

ВЛИЯНИЕ ПРОВЕДЕННЫХ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ ШТОЛЕН ГОРНОГО МАССИВА ДЕГЕЛЕН НА РАДИАЦИОННУЮ ОБСТАНОВКУ ПРИПОРТАЛЬНЫХ УЧАСТКОВ.....	5
Коровикова Т.В., Мустафина Е.В., Осинцев А.Ю., Дмитропавленко В.Н., Яковенко Ю.Ю.	
К ВОПРОСУ ОБ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ РЕАКТОРНОЙ УСТАНОВКИ БН-350	20
Коровина О.Ю., Лукашенко С.Н., Каширский В.В.	
ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ ЭКОСИСТЕМ ВОДОТОКОВ ГОРНОГО МАССИВА ДЕГЕЛЕН	28
Кабдыракова А.М., Кундузбаева А.Е., Лукашенко С.Н.	
МЕХАНИЗМЫ ФОРМИРОВАНИЯ ЗАГРЯЗНЕННОСТИ ТРИТИЕМ ВОЗДУШНОГО БАССЕЙНА В ПРЕДЕЛАХ ГОРНОГО МАССИВА "ДЕГЕЛЕН"	37
Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В.	
ФОРМИРОВАНИЕ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ НА ШТОЛЬНЯХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»	47
Мустафина Е.В., Лукашенко С.Н., Осинцев А.Ю., Брянцева Н.В.	
УТИЛИЗАЦИЯ ИСТОЧНИКОВ РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ НА ТЕРРИТОРИИ БЫВШЕГО ВОЕННОГО АРСЕНАЛА В п. ТОКРАЗ	59
Дмитропавленко В.Н., Осинцев А.Ю., Коровина О.Ю., Мустафина Е.В.	
ОЦЕНКА ВОЗМОЖНОСТЕЙ ПРОТЕКАНИЯ ПРОЦЕССОВ КАТАСТРОФИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА НА ПЛОЩАДКЕ «БАЛАПАН»	71
Субботин С.Б., Лукашенко С.Н., Генова С.В., Романенко В.В., Русинова Л.А., Дроздов А.В., Чернова Л.М.	
ИССЛЕДОВАНИЕ КАЧЕСТВА ИЗГОТОВЛЕННЫХ В АО "УМЗ" МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ РЕАКТОРА ИТЭР	82
Бакланов В.В., Дерявко И.И., Коянбаев Е.Т., Кукушкин И.М., Саблук В.В., Ударцев С.В.	
ИДЕНТИФИКАЦИЯ ЦИРКОНИЙ-УРАНОВЫХ ТВЭЛОВ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА ИВГ.1М	91
Бакланов В.В., Гныря В.С., Горин Н.В., Дерявко И.И., Кенжин Е.А., Колбаенков А.Н., Павшук В.А., Тухватулин Ш.Т., Черепнин Ю.С., Чернядьев В.В.	
ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ОБРАБОТКИ ДАННЫХ ФИЗИЧЕСКИХ ДИАГНОСТИК УСТАНОВКИ КТМ	98
Шумайлова О.Н., Колокольцов М.В., Кренин А.А., Макаров Д.А., Садыков А.Д., Шипилов Д.В.	
ТЕРМИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ ДИФфуЗИИ И ФАЗООБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТОЙ СИСТЕМЕ Fe-Ti ПРИ ИЗОХРОННОМ ОТЖИГЕ	103
Манакова И.А., Верещак М.Ф., Сергеева Л.С., Сухоруков И.А., Жанкадамова А.М., Русаков В.С., Кадыржанов К. К.	
НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ ОБРАТНОГО МАРТЕНСИТНОГО $\alpha' \rightarrow \gamma$ – ПРЕВРАЩЕНИЯ В СТАЛИ 12X18N10T, ОБЛУЧЕННОЙ ДО ВЫСОКИХ ПОВРЕЖДАЮЩИХ ДОЗ В БЫСТРОМ РЕАКТОРЕ БН-350	109
Максимкин О.П., Мережко М.С., Рубан С.В., Рахашев Б.К.	

МАРТЕНСИТНОЕ $\gamma \rightarrow \alpha'$ – ПРЕВРАЩЕНИЕ ПРИ РАСТЯЖЕНИИ СТАЛЬНОГО ОБРАЗЦА С КРУГОВЫМ КОНЦЕНТРАТОРОМ НАПРЯЖЕНИЯ	116
Максимкин О.П., Пазылбек С.А., Бактибаев А.Н.	
ХАРАКТЕРИСТИЧЕСКОЕ РЕНТГЕНОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ, ИНДУЦИРОВАННОЕ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ	123
Горлачев И.Д., Дегтярев В.В., Иванов И.А., Лысухин С.Н., Пеньков Ф.М.	
EBSD-ИЗУЧЕНИЕ МАРТЕНСИТНОГО ПРЕВРАЩЕНИЯ В РЕАКТОРНОЙ СТАЛИ 12Х18Н10Т, ХОЛОДНОДЕФОРМИРОВАННОЙ И ОБЛУЧЕННОЙ ИОНАМИ КРИПТОНА С ЭНЕРГИЕЙ 1.56 МЭВ/НУКЛОН	144
Русакова А.В., Максимкин О.П., Гусев М.Н.	
ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ ПОРОГА ВОЗБУЖДЕНИЯ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ В УСЛОВИЯХ ОПТИКО-СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО ЗАСЕЛЕНИЯ ИСХОДНОГО УРОВНЯ ПРИ ПРИСУТСТВИИ БУФЕРНОГО ГАЗА	150
Бимагамбетов Т.С.	

УДК 577.4:504.064:539.16

ВЛИЯНИЕ ПРОВЕДЕННЫХ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ ШТОЛЕН ГОРНОГО МАССИВА ДЕГЕЛЕН НА РАДИАЦИОННУЮ ОБСТАНОВКУ ПРИПОРТАЛЬНЫХ УЧАСТКОВ

Коровикова Т.В., Мустафина Е.В., Осинцев А.Ю., Дмитропавленко В.Н., Яковенко Ю.Ю.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В рамках работ по ликвидации инфраструктуры ядерных испытаний в целях уменьшения угрозы распространения ядерного оружия было проведено повторное консервирование 9 штолен горного массива Дегелен Семипалатинского испытательного полигона. Целью данных радиоэкологических исследований являлась оценка состояния объектов окружающей среды, а также возможного негативного влияния проведенных работ на припортальных участках данных штолен. Представлены результаты изменения радиоэкологической обстановки на припортальных участках каждой контролируемой штольни.

ВВЕДЕНИЕ

В период с 1996 по 2000 гг. на всех инженерных сооружениях Семипалатинского испытательного полигона были выполнены мероприятия по ликвидации инфраструктуры ядерных испытаний, в том числе для исключения несанкционированного доступа в сооружения. Обследования состояния инженерных сооружений расположенных на площадке Дегелен, проведенные в 2001 - 2005 г.г. показали, что к настоящему моменту имеется факт наличия вскрытия или нарушения защитных барьеров на инженерных сооружениях. В отдельных местах на извлеченных металлоконструкциях зафиксированы следы отходов ядерной деятельности (ОЯД).

Для уменьшения угрозы распространения ОЯД, связанной с несанкционированным вскрытием, было решено реализовать дополнительную защиту инженерных сооружений. С сентября 2006 г. по декабрь 2009 г. была выполнена дополнительная защита 9 штолен.

Первым этапом работ было проведение предварительного радиоэкологического обследования прилегающей территории, внутри периметра предполагаемой рабочей площадки и на территории полевого лагеря. На припортальном участке каждой штольни были проведены исследования по определению радиационного состояния объектов. Полученные результаты исследований позволили более индивидуально подойти к планированию работ на каждой штольне для предотвращения переоблучения персонала.

Для определения возможного изменения радиационной обстановки в районе каждого объекта, которое могло произойти в результате проведения инженерных работ на штольне, было проведено заключительное радиоэкологическое обследование по схеме аналогичной предварительному обследованию.

1. ИСХОДНАЯ ИНФОРМАЦИЯ

Район проведения работ – горный массив Дегелен, представляющий собой куполовидное возвышение диаметром примерно 18 км с перепадом высоты до 300 м. По географическому положению горный массив Дегелен располагается в северо-восточной части Казахского мелкосопочника в пределах территории бывшего Семипалатинского испытательного полигона. Схема расположения объектов на площадке Дегелен и фотографии порталов штолен до начала работ представлены на рисунке 1.

1.1 Методы создания дополнительной защиты инженерных сооружений (2006-2009 гг.)

Создание дополнительной защиты инженерных сооружений заключалось в заполнении полостей штольни связующим материалом, исключающим возможность несанкционированного извлечения ОЯД. В зависимости от исходных данных к заданию на проектирование создание дополнительной защиты осуществлялось двумя методами:

- создание дополнительной защиты инженерных сооружений через вертикальные скважины, пробуренные с поверхности горного массива – вертикальный метод (рисунок 2 а);
- создание дополнительной защиты инженерных сооружений посредством вскрытия портала сооружения и последующей горной выработки штолен – горизонтальный метод (рисунок 2 б).

В зависимости от метода создания дополнительной защиты штольням были присвоены условные обозначения:

- с горизонтальным методом создания дополнительной защиты – Г1, Г2, Г3, Г4;
- с вертикальным методом создания дополнительной защиты – В1, В2, В3, В4, В5.

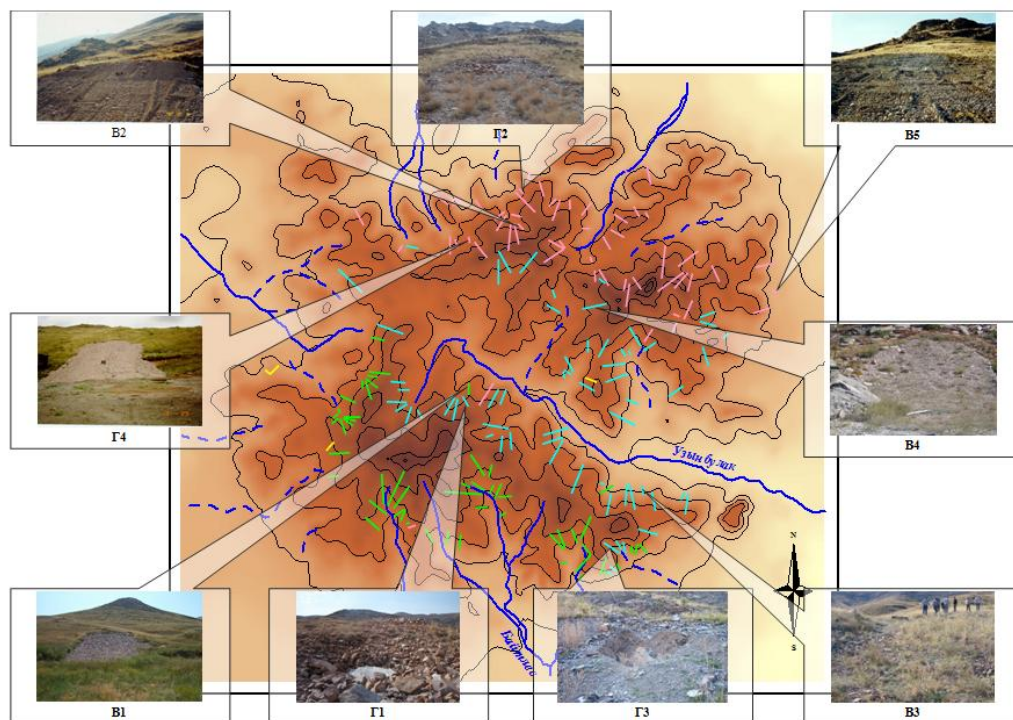


Рисунок 1. Расположение штолен на площадке Дегелен



а



б

Рисунок 2. Вертикальный (а) и горизонтальный (б) методы создания дополнительной защиты инженерных сооружений

1.2 Характеристика источника радиоактивного загрязнения

По данным литературных источников [1, 2] испытания в исследуемых штольнях были проведены в различных целях: для создания или совершенствования ядерного оружия (СЯО), для фундаментальных и методических исследований (ФМИ), для исследования аварийных режимов и аварийных ситуаций (ИАР), исследования поражающих факторов ЯВ и их воздействия на военные и гражданские объекты (ИПФ). В штольнях с условными названиями Г1, Г3, Г4, В3, В4 проводились групповые взрывы с использованием нескольких зарядов.

Т.к. за все время исследования вышеуказанных штолен не было случаев регистрации ^{235}U и ^{238}U в активностях превышающих естественный фон данной местности, то можно считать, что все ядерные

заряды были собраны на основе ^{239}Pu . В этом случае источниками радиоактивного загрязнения исследуемых штолен являются осколки деления ^{239}Pu , остатки делящегося вещества и продукты активации.

Массовые выходы осколков мгновенного деления ^{239}Pu хорошо изучены и представлены в литературных источниках [3]. Основываясь на этом и используя исходные данные о взрыве, были проведены расчеты активности с учетом периода полураспада осколков деления ^{239}Pu , вклад которых в общую активность значим.

Количество оставшегося делящегося вещества к моменту разрушения конструкции ядерного заряда определяется эффективностью ядерного взрыва. Эффективность ядерного взрыва, в зависимости от времени проведения испытаний, типа и конструкции ядерного устройства, может меняться от 1 до 30 %.

Для расчета количества остатков делящегося вещества, в виду отсутствия информации по данному взрыву, эффективность была принята равной 20%. По проведенным теоретическим расчетам на 1 кт взрыва, в момент времени после взрыва $t = 0$ активность ^{239}Pu составляет $4,8 \cdot 10^{11}$ Бк/кт. Далее, зная типичный изотопный состав оружейного Pu, была вычислена активность других его изотопов, входящих в вещество заряда (рисунок 3).

Таким образом, на припортальных участках данных штолен следует ожидать повышенное содержание радионуклидов ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{151}Sm , ^{241}Am и изотопов плутония. Оснащение лаборатории высокочувствительными гамма-, бета-спектрометрами

позволяет идентифицировать основные техногенные радионуклиды: ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am . Определение $^{239+240}\text{Pu}$ осуществляется с помощью альфа-спектрометрических установок с предварительной радиохимической подготовкой. Определение ^{99}Tc и ^{151}Sm до настоящего времени при обследовании СИП не рассматривалось по причине отсутствия стандартных методик определения, хотя вклад данных радионуклидов является значительным. Разработка методик определения данных радионуклидов в объектах окружающей среды, осуществляемая лабораториями НЯЦ, позволит в ближайшем будущем оценить содержание ^{99}Tc и ^{151}Sm на территории полигона, и в частности на площадках Дегелен.



Рисунок 3. Расчетная активность осколков деления ^{239}Pu и остатков делящегося вещества на штольнях Г1-Г4, В1-В5 горного массива «Дегелен», Бк

Радиационная обстановка на территории припортальных площадок по результатам обследования 1999 г.

В период с 1996 по 1998 гг. были проведены мероприятия по закрытию данных штолен. После чего для уточнения радиационной обстановки на территориях припортальных площадок в 1999 г. было проведено радиометрическое обследование по сети 20×20 метров, с измерением МЭД, плотности потока α - и β -частиц в каждой точке. На каждой штольне был проведен отбор 5 проб грунта.

По результатам радиометрического обследования наиболее радиационно-опасная ситуация зафиксирована на штольнях В1 (плотность потока β -частиц до $2500 \text{ част/мин} \cdot \text{см}^2$) и В2 (МЭД до 45 мкЗв/ч , плотность потока α -частиц до $8 \text{ част/мин} \cdot \text{см}^2$). На штольнях Г1, Г2, Г3, Г4, В3, В4, В5 максимальные значения радиационных параметров не превышали допустимых [4]. Результаты измерений МЭД представлены на рисунке 4.

В результате анализа данных лабораторных исследований было установлено, что удельная активность радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в отобранных пробах грунта после проведения работ на припортальных участках штолен Г1, Г2, Г3, В4, В5 не превышала нормативного уровня МЗУА для данных радионуклидов (МЗУА ^{137}Cs - $1 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{90}Sr - $1 \cdot 10^5$ Бк/кг, ^{241}Am - $1 \cdot 10^3$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ -

$1 \cdot 10^3$ Бк/кг, НРБ-99). На территории припортальных площадок штолен В1, В3 и Г4 были обнаружены участки радиоактивного загрязнения с повышенным содержанием трансурановых радионуклидов. Максимальные значения удельных активностей радионуклидов после проведения закрытия штолен представлены на рисунке 5. Припортальный участок штольни В2 по итогам заключительного обследования в 1999 г. являлся самым радиационно-опасным. Максимальное содержание ^{137}Cs составило $9,7 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{241}Am - $2,3 \cdot 10^6$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ - $2,0 \cdot 10^8$ Бк/кг. Данные показатели активности значительно превышают нормативный уровень МЗУА.

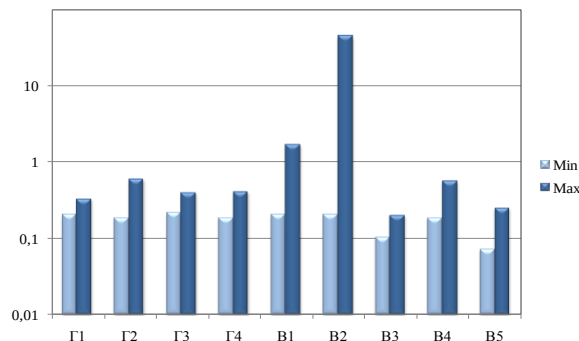


Рисунок 4. Максимальные и минимальные значения МЭД по результатам обследования штолен в 1999 г., мкЗв/ч

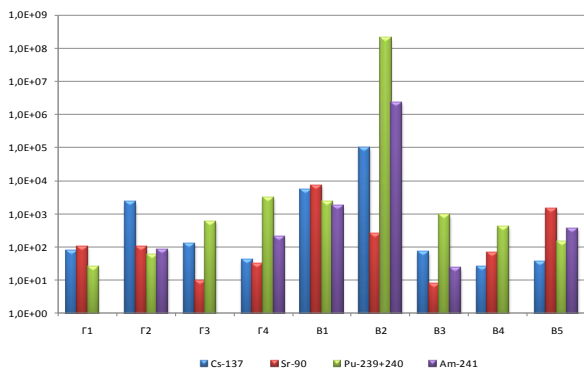


Рисунок 5. Максимальные значения удельных активностей радионуклидов за период заключительного обследования штолен в 1999 г., Бк/кг

2. ОСНОВНЫЕ ФАКТОРЫ, ВЛИЯЮЩИЕ НА ФОРМИРОВАНИЕ РАДИАЦИОННОЙ ОБСТАНОВКИ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ

Факторы, влияющие на формирование радиационной обстановки можно условно разделить на 3 группы в зависимости от типа создания дополнительной защиты:

- общие факторы, не зависящие от типа создания дополнительной защиты;
- факторы, характерные для вертикального метода;
- факторы, характерные для горизонтального метода.

К общим факторам, влияющим на формирование радиационной обстановки, можно отнести радиоактивное загрязнение поверхности рабочей площадки. Данное загрязнение могло быть сформировано много лет назад (проведение испытаний) и, соответственно, выявлено на стадии предварительного обследования. В таком случае проводятся соответствующие мероприятия по устранению (снижению) влияния данного фактора на рабочий персонал (дезактивация, отсыпка чистым грунтом и т.д.). Наряду с этим данное загрязнение могло быть образовано при проведении работ по планировке площадки, в случае, если при планировке были вскрыты навалы (отвалы), содержащие значительное радиоактивное загрязнение.

На радиационную обстановку также могут оказывать влияние расположенные в непосредственной близости объекты повышенной радиационной опасности (загрязненные припортовые участки других штолен, навалы или отвалы с высоким уровнем поверхностного радиоактивного загрязнения). Вследствие вторичного переноса (ветровой подъем пыли с высокой удельной активностью радионуклидов, смыв поверхностными водами) радиоактивное загрязнение с данных объектов может перераспределяться на припортовые участки изучаемых штолен и изменять радиационную обстановку на них.

При вертикальном методе создания дополнительной защиты к общим факторам формирования

радиационной обстановки добавляется возможное загрязнение рабочей площадки при бурении вследствие выноса радиоактивного загрязнения из тела штольни (или прилегающих горных пород) с буровым шламом и вследствие выброса пыли (в виде аэрозолей) через пробуренные скважины, как во время бурения дополнительных скважин, так и во время создания дополнительной защиты (заливка тела штольни бетоном).

При горизонтальном методе создания дополнительной защиты основные факторы, формирующие радиационную обстановку на припортовой площадке, связаны с вероятным выносом радиоактивного загрязнения из тела штольни с вывозимой породой, образованной при проходе штольни. Несмотря на постоянный радиометрический контроль вывозимой породы, ввиду специфики проведения работ (передвижение персонала, транспорта и др. оборудования), остается вероятность поступления радиоактивного загрязнения на припортовый участок. Также загрязнение припортового участка может произойти вследствие выноса радиоактивных аэрозолей при вентиляции штольни. Выход радиоактивных аэрозолей может привести, как к повышению объемной радиоактивности приземного слоя атмосферы, так и при их выпадении увеличению удельной активности поверхностного слоя почвы.

Изменение радиационной обстановки на припортовом участке как при вертикальном, так и при горизонтальном методе, также может произойти в результате перераспределения имеющегося радиоактивного загрязнения в результате вторичного переноса персоналом и техникой, как из тела штольни, так и с отвалов вывозимой из штольни породы. Представленные факторы могут изменить радиационную обстановку на рабочей площадке, а также могут привести к повышению объемной радиоактивности приземного слоя атмосферы.

3. РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА НА ТЕРРИТОРИИ ПРИПОРТОВЫХ ПЛОЩАДОК ШТОЛЕН ДО НАЧАЛА РАБОТ (2006-2009 гг.)

3.1 Радиационная обстановка по результатам радиометрических и дозиметрических измерений

Предварительное радиометрическое обследование припортовых участков проводилось по равномерной сетке 10×5 м с определением МЭД и поверхностного загрязнения грунта α , β -частицами в фиксированных точках, а также определением МЭД в режиме «Поиск» между точками.

Территории обследования варьировались в зависимости от ландшафта и находились в диапазоне от 8000 до 44000 м². На территории обследования проводилась разбивка точек с помощью GPS приемника. Фиксированные измерения МЭД проводились в узлах сетки 10×5 м размеченной на припортовой площадке. Измерение плотности потока α - и β - частиц на территории площадки проводились по сетке 20×20 м.

На территории штолен, создание дополнительной защиты на которых планировалось проводить вертикальным методом, проводились дополнительные измерения МЭД в режиме «Поиск» на участке, расположенном по оси штольни от точки врезки, шириной ~50 м и длиной ~250 м.

Данные по максимальным и минимальным измеренным значениям МЭД за период предварительного обследования штолен представлены на гистограмме (рисунок 6). Минимальные значения плотности потока β -частиц, зафиксированные при проведении обследования на территории припортовых площадок всех штолен, не превысили 10 част/мин·см². Максимальные значения плотности потока β -частиц, зафиксированные при проведении предварительного обследования, представлены на гистограмме (рисунок 7).

Значения плотности потока α -частиц, зафиксированные при проведении предварительного обследования на всех участках обследования, не превысили предела обнаружения используемых средств измерений (0,2-10 част/мин·см²), за исключением двух локальных участков загрязнения обнаруженных на штольнях Г4 (140 част/мин·см²) и В2 (100 част/мин·см²).

Сравнение результатов обследования штолен в 1999 г. с результатами обследования до начала работ показывает, что наиболее радиационно-опасная ситуация в обоих случаях зафиксирована на территории штольни В2, где был обнаружен участок локального загрязнения со значениями МЭД – 44 мкЗв/ч, плотности потока α -частиц –

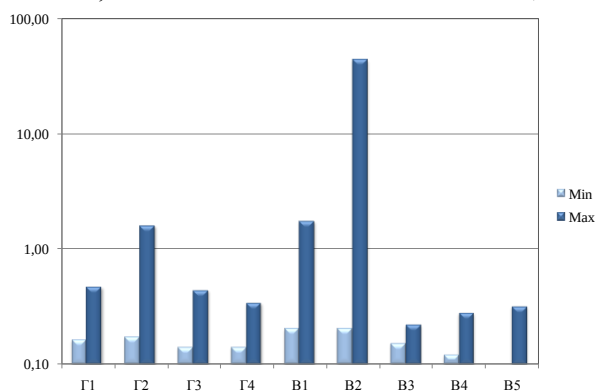


Рисунок 6. Максимальные и минимальные значения МЭД за период предварительного обследования штолен, мкЗв/ч

3.2 Радионуклидное загрязнение поверхностного слоя почвы

Для предварительной оценки загрязнения обследуемой территории радионуклидами был проведен отбор проб окружающей среды в точках, равномерно расположенных по всему участку обследования, на рабочих и жилых площадках, на отвалах, насыпках, в местах максимальных значений радиационных параметров и предполагаемых точках врезки.

100 част/мин·см², что превышает допустимое значения для персонала категории А в случае постоянного пребывания [4]. Так же высокие значения радиационных параметров, превышающие допустимые значения по НРБ – 99, зафиксированы на штольнях Г4 (плотность потока α -частиц 140 част/мин·см²) [4]. На территории остальных штолен радиационные параметры не превышали допустимых значений для персонала категории А [4]. Необходимо обратить внимание на припортовую площадку штольни В1, значения радиационных параметров на которой не превышают допустимых значений, однако на территории припортовой площадки зафиксировано загрязнение характеризуемое высокими значениями плотности потока β -частиц (100-700 част/мин·см²) общей площадью 330 м². Данное загрязнение обусловлено выносом радиоактивного загрязнения из штольни с водой.

Было зафиксировано изменение радиационной ситуации на штольнях Г1, Г3, В2 и значительные ухудшения радиационной ситуации на штольнях Г2, Г4, В2 в сравнении с данными 1999 г. Это объясняется неоднократно зафиксированными попытками вскрытия порталов штолен и вынесением загрязненного грунта и металлоконструкций из полости штолен на дневную поверхность. Так, например, при проведении предварительного обследования штольни Г4 был обнаружен лаз в полость штольни, за территорией обследования обнаружены фрагменты железной конструкции (МЭД – 23 мкЗв/ч, плотности потока α -частиц – 140 част/мин·см²).

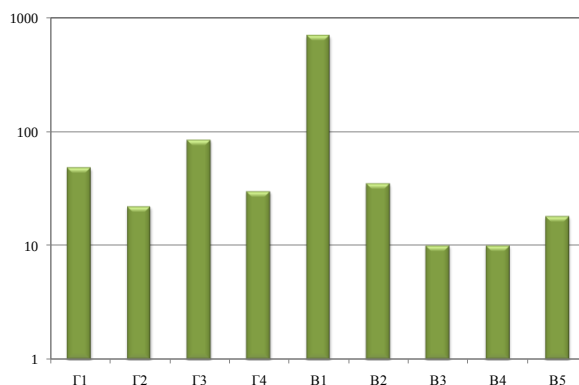


Рисунок 7. Максимальные значения плотности потока β -частиц за период предварительного обследования штолен, част/мин·см²

Для проведения лабораторных анализов использовалось гамма-, бета- и альфа спектрометрическое оборудование.

Содержание естественных радионуклидов на исследуемой территории штолен горного массива соответствует естественному фону данного района (преимущественно горные породы разновидностей гранита). В отношении техногенных радионуклидов в качестве показателей фона были определены следующие значения удельных активностей: для ¹³⁷Cs –

30 Бк/кг, ^{90}Sr – 20 Бк/кг, ^{241}Am – 0,2 Бк/кг и $^{239+240}\text{Pu}$ – 1 Бк/кг. Для определения степени опасности объекта лабораторные данные по содержанию техногенных радионуклидов в грунте сравнивались с показателями минимально значимой удельной активности согласно НРБ-99: ^{137}Cs – $1 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{90}Sr – $1 \cdot 10^5$ Бк/кг, ^{241}Am – $1 \cdot 10^3$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – $1 \cdot 10^3$ Бк/кг.

Данные по максимальным значениям удельных активностей радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ за период предварительного обследования штолен представлены на гистограмме (рисунок 8).

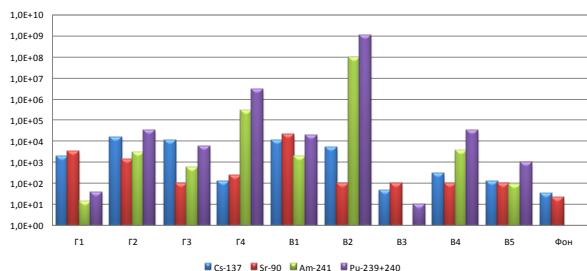


Рисунок 8. Максимальные значения удельных активностей радионуклидов за период предварительного обследования штолен, Бк/кг

Содержание $^{239+240}\text{Pu}$ в некоторых точках определялось расчетным способом, используя полученные лабораторные данные. Для штолен Г2, В2, В4 было доказано, что соотношение содержания ^{241}Am к $^{239+240}\text{Pu}$ в пробах грунта на территории данных штолен составляет 1:11. В остальных случаях для расчета возможного содержания изотопов плутония использовалось среднее соотношение содержания ^{241}Am к $^{239+240}\text{Pu}$ 1:10, которое было определено по данным лабораторных исследований почвы территории СИП и является наиболее распространенным.

Максимальное содержание ^{90}Sr на территории исследуемых штолен не превышало МЗУА для данного радионуклида $1 \cdot 10^5$ Бк/кг.

По результатам сравнения максимальных значений удельных активностей радионуклидов ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ с нормативным уровнем (МЗУА, НРБ-99) штольни были разделены по характеру загрязнения:

1. штольни, на исследуемых территориях которых содержание радионуклидов в грунте не превышает нормативный уровень по всем определяемым радионуклидам (Г1, В3, В5);
2. штольни, на исследуемых территориях которых максимальное содержание радионуклида ^{137}Cs в грунте не превышает нормативный уровень МЗУА, а удельные активности трансурановых радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ превышают МЗУА (Г4, В2, В4);
3. штольни, на исследуемых территориях которых максимальное содержание радионуклида ^{137}Cs в грунте превышает нормативный уровень МЗУА и удельные активности трансурановых радионуклидов ^{241}Am или $^{239+240}\text{Pu}$ также превышают МЗУА (Г2, Г3, В1).

Первая группа штолен является наиболее радиационно-безопасной. Содержание ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в грунте исследуемой территории штолен Г1, В3, В5 не превышает нормативный уровень (МЗУА, НРБ-99). Максимальное значение содержания ^{137}Cs на данных объектах на предварительном этапе находилось на уровне $1,9 \cdot 10^3$ Бк/кг, ^{90}Sr – $3,1 \cdot 10^3$ Бк/кг (штольня Г1), ^{241}Am – 90 Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – 900 Бк/кг (штольня В5).

Вторая группа штолен В4, Г4, В2 характеризуется превышением содержания в грунте исследуемой территории трансурановых радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$. На территории штольни Г4 максимальное содержание ^{137}Cs составляет 120 Бк/кг, а ^{241}Am – 250 Бк/кг. Исключением является один участок локального радиоактивного загрязнения, который возник вследствие ведения несанкционированной хозяйственной деятельности по обжигу кабеля до начала работ по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений. Максимальное содержание ^{241}Am составило $2,8 \cdot 10^5$ Бк/кг, с учетом среднего соотношения содержания ^{241}Am к $^{239+240}\text{Pu}$ 1:10, ожидаемое содержание $^{239+240}\text{Pu}$ может достигать $2,8 \cdot 10^6$ Бк/кг.

На территории объектов В4 и В2 имеет место повсеместное распространение радионуклидов ^{241}Am , ^{137}Cs и $^{239+240}\text{Pu}$. Максимальное содержание ^{137}Cs на исследуемых территориях не превышает МЗУА, однако практически в каждой точке обследования фиксировалось наличие техногенных радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$, с максимальным значением ^{241}Am – $9,6 \cdot 10^7$ Бк/кг. Особое внимание при работах на объекте было уделено точкам 053А и 112 объекта В2, содержание ^{241}Am в данных точках равно $9,6 \cdot 10^7$ Бк/кг и $1,7 \cdot 10^6$ Бк/кг, а максимально возможное значение удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ в данных точках может достигнуть $1 \cdot 10^9$ и $2 \cdot 10^8$ Бк/кг соответственно (рисунок 19).

Третья группа штолен Г2, Г3, В1 характеризуется превышением МЗУА по содержанию ^{137}Cs и трансурановых радионуклидов (^{241}Am или $^{239+240}\text{Pu}$). Максимальное значение удельной активности ^{137}Cs составило $1,5 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{241}Am – $3,0 \cdot 10^3$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – $3,3 \cdot 10^4$ Бк/кг (штольня Г2). Загрязненными участками при обследовании штольни Г2 являлись навалы грунта, щебня, участки возле портала, штольни Г3 – локальный участок, загрязнение которого, по всей вероятности, вызвано обжигом радиоактивно-загрязненного кабеля, изъятых из близлежащих штолен.

На территории штольни В1 зафиксировано 3 загрязненных участка по ^{137}Cs и ^{241}Am , при этом грунт с двух участков, расположенных в районе пересохшего ручья возле портала штольни, можно отнести к категории материалов ограниченного использования (МОИ, от 300 Бк/кг до МЗУА), грунт с третьего участка относится к категории радиоактивных отходов. Удельная активность ^{137}Cs на данном участке составила $1,1 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{241}Am – $1,9 \cdot 10^3$ Бк/кг. Ожи-

даемое содержание изотопов Pu может составить порядка $2,0 \cdot 10^4$ Бк/кг, что превысит значение минимально значимой удельной активности по данному радионуклиду в 20 раз.

3.3 Радионуклидное загрязнение приземного слоя атмосферы

Основными радиоактивными веществами, характеризующими загрязнение воздушной среды, являются техногенные радионуклиды ^3H , ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$. Определение объемной активности техногенных радионуклидов в воздушной среде проводилось прямыми измерениями объемной активности техногенных радионуклидов в отобранных пробах воздушных аэрозолей и водяных паров, согласно [6, 7].

По результатам работ было установлено, что содержание техногенных радионуклидов в воздушной среде всех объектов находилось на уровнях, ниже значений допустимой объемной активности, установленных НРБ-99 [4]. Содержание ^3H в воздушном бассейне площадки Дегелен находится в широких диапазонах от 0,2 до 240 Бк/м³, что на порядок меньше допустимой объемной активности для категории «Население», но при определенных условиях вклад трития в дозовую нагрузку может составить до 10%.

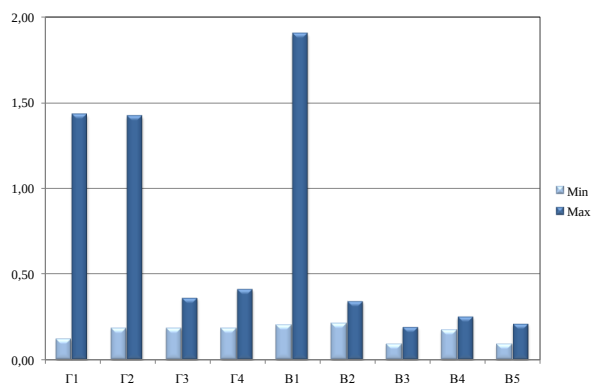


Рисунок 9. Максимальные и минимальные измеренные значения МЭД на территории припортовых площадок после завершения работ, мкЗв/ч

4.2 Радионуклидное загрязнение поверхностного слоя почвы

На заключительном этапе работ была проведена оценка состояния остаточного загрязнения территории припортовых участков штолен техногенными радионуклидами.

Максимальное значение содержания радионуклида ^{137}Cs зафиксировано на припортовой территории штольни В1 ($3,9 \cdot 10^4$ Бк/кг), ^{241}Am и, соответственно, изотопов плутония – на штольне В2 ($4,1 \cdot 10^4$ Бк/кг и $4,5 \cdot 10^5$ Бк/кг) (рисунок 11). Максимальное содержание ^{90}Sr на обследуемых штольнях не превышает МЗУА для данного радионуклида $1 \cdot 10^5$ Бк/кг.

По характеру загрязнения, сравнивая максимальные значения удельных активностей радионуклидов ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ с нормативным уровнем

4. РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА НА ТЕРРИТОРИИ ПРИПОРТАЛЬНЫХ ПЛОЩАДОК ШТОЛЕН ПОСЛЕ ЗАВЕРШЕНИЯ РАБОТ

4.1 Радиационная обстановка по результатам радиометрических и дозиметрических измерений

Заключительное обследование проводилось по схеме аналогичной предварительному обследованию.

Данные по измеренным значениям МЭД и плотности потока β -частиц за период заключительного обследования штолен представлены на гистограммах (рисунок 9, 10).

Значения плотности потока α -частиц, зафиксированные при проведении заключительного обследования на всех участках обследования, не превысили предела обнаружения используемых средств измерений (0,2-10 част/мин·см²).

По результатам заключительного обследования максимальные радиационные параметры, зафиксированы на территории припортовых площадок штолен В1 (МЭД – 1,9 мкЗв/ч, плотности потока β -частиц – 610 част/мин·см²). На территории всех штолен по результатам обследования после завершения работ по сооружению дополнительной защиты радиационные параметры не превышали допустимых значений для персонала категории А [4].

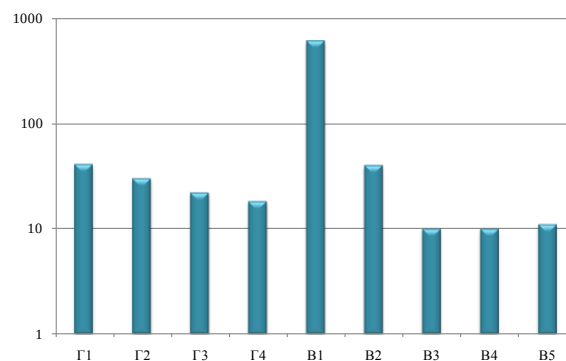


Рисунок 10. Максимальные значения плотности потока β -частиц за период заключительного обследования штолен, част/мин·см²

(МЗУА, НРБ-99), припортовые участки штолен можно разделить на две группы:

1. штольни, на исследуемых территориях которых содержание радионуклидов в грунте не превышает нормативный уровень по всем определяемым радионуклидам (В3, В4, В5);
2. штольни, на территориях которых максимальные удельные активности трансурановых радионуклидов ^{241}Am или $^{239+240}\text{Pu}$ превышают МЗУА (Г1-Г4, В1, В2).

На исследуемых объектах первой группы штолен радиационная опасность отсутствует. Максимальное значение содержания ^{137}Cs на территории припортовых участков штолен на заключительном этапе находилось на уровне $2,9 \cdot 10^2$ Бк/кг, ^{241}Am – 15 Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – 165 Бк/кг (штольня В4). Удель-

ная активность ^{90}Sr не превышала пределов обнаружения используемого оборудования.

Вторая группа штолен характеризуется превышением МЗУА по содержанию в грунте обследуемой территории трансуроновых радионуклидов ^{241}Am и/или $^{239+240}\text{Pu}$. Максимальное значение удельной активности ^{241}Am составило $4,1 \cdot 10^4$ Бк/кг, $^{239+240}\text{Pu}$ – $4,5 \cdot 10^5$ Бк/кг (штольня В2). Данные значения по содержанию ^{241}Am в 41 раз, а для $^{239+240}\text{Pu}$ – в 450 раз превышают нормативный уровень для данных радионуклидов (МЗУА, НРБ-99).

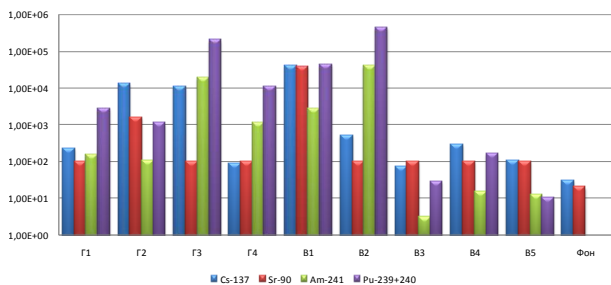


Рисунок 11. Максимальные значения удельных активностей радионуклидов за период заключительного обследования штолен, Бк/кг

Содержание ^{137}Cs , ^{90}Sr и ^{241}Am в грунте исследуемой территории штольни Г1 не превышает нормативный уровень (МЗУА, НРБ-99). Расчетные данные по плутонию и результаты радиохимического анализа проб показывают, что на нескольких участках исследуемой территории существует опасность превышения удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ над нормативным уровнем (МЗУА – $1 \cdot 10^3$ Бк/кг).

На территории штольни Г2 практически на всех обследуемых участках обнаружено содержание ^{241}Am и ^{137}Cs . Максимальная удельная активность ^{241}Am не превысила 1/10 МЗУА для данного радионуклида (100 Бк/кг), а максимальная активность ^{137}Cs составила $1,4 \cdot 10^4$ Бк/кг. Содержание $^{239+240}\text{Pu}$ в грунте находится в пределах значения МЗУА, с максимальным значением $1,1 \cdot 10^3$ Бк/кг.

Результаты лабораторных анализов грунта, отобранного на припорทัลном участке штольни Г3, свидетельствуют о незначительном присутствии радионуклида ^{137}Cs (максимальное значение 75 Бк/кг), об отсутствии ^{241}Am (<1 Бк/кг). Исключением являются участки локального загрязнения:

- участок №1 – ^{241}Am – $2,0 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{137}Cs – $1,2 \cdot 10^3$ Бк/кг, ^{152}Eu – 32 Бк/кг, ^{60}Co – 5 Бк/кг, ^{90}Sr – $7,7 \cdot 10^2$ Бк/кг;
- участок №2 (загрязнение было обнаружено в ходе проведения предварительного обследования) – ^{241}Am – $6,0 \cdot 10^2$ Бк/кг, ^{137}Cs – $1,1 \cdot 10^4$ Бк/кг, ^{152}Eu – $2,5 \cdot 10^2$ Бк/кг, ^{154}Eu – 19 Бк/кг, ^{60}Co – 45 Бк/кг, ^{90}Sr – $4 \cdot 10^2$ Бк/кг.

Ожидаемое содержание $^{239+240}\text{Pu}$ на первом участке будет порядка $2,0 \cdot 10^5$ Бк/кг. Таким образом, грунт, локализованный на участке №1 будет отно-

ситься к среднеактивным радиоактивным отходам [5]. На участке №2 ожидаемое содержание $^{239+240}\text{Pu}$ будет составлять $6,0 \cdot 10^3$ Бк/кг, что относится к низкоактивным радиоактивным отходам.

Значения удельной активности ^{90}Sr и ^{137}Cs в грунте, отобранном на припорทัลном участке штольни Г4, не превысили нормативных уровней МЗУА. Однако, на данной штольне присутствие ^{241}Am зафиксировано в 45% точек, в основном, на территории засыпки, отвала. Максимальное значение составило $1,1 \cdot 10^3$ Бк/кг (засыпка), что превышает МЗУА для данного радионуклида в 1,1 раза. Наличие техногенного загрязнения было обнаружено и на отсыпанном участке локального загрязнения, обнаруженного при предварительном обследовании (^{241}Am – $2,7 \cdot 10^2$ Бк/кг). Это может быть связано с тем, что для отсыпки загрязненных участков использовался грунт с техногенно-поврежденного горного склона, который в более глубоких слоях грунта мог содержать трансуроновые радионуклиды. Полевой гамма-спектрометрический контроль при проведении рекультивационных работ не выявил скрытого под поверхностью техногенного загрязнения, которое было обнаружено только после проведения лабораторных анализов отобранных проб щебня при заключительном обследовании.

Максимальная удельная активность ^{90}Sr на территории рабочей площадки штольни В1 не превышает нормативный уровень, равный $1 \cdot 10^5$ Бк/кг, а по ^{137}Cs превышение уровня $1 \cdot 10^4$ Бк/кг зафиксировано в двух точках ($3,9 \cdot 10^4$ Бк/кг и $1,1 \cdot 10^4$ Бк/кг). Данное превышение объясняется переносом загрязненного грунта с территории рабочей площадки и выносом радионуклидного загрязнения из штольни. Содержание ^{241}Am после завершения работ на исследуемой территории в основном не превышает нормативный уровень МЗУА, исключение составляет одна точка ($2,7 \cdot 10^3$ Бк/кг), находящаяся на территории рабочей площадки. Расчетные данные по плутонию и результаты радиохимического анализа проб показывают, что на исследуемой территории в трех точках возможно превышение содержания $^{239+240}\text{Pu}$ над нормативным уровнем (МЗУА $1 \cdot 10^3$ Бк/кг) до 40 раз ($4,4 \cdot 10^4$ Бк/кг).

В процессе выполнения инженерных работ на штольне В1, по всей видимости, произошел вынос радионуклидного загрязнения за пределы штольни, в связи с чем оказалась загрязненной территория вблизи портала штольни. Однако, мероприятия по локализации радиоактивного загрязнения не позволили распространение загрязнения на прилегающие к рабочей площадке территории.

Припортальная территория штольни В2 после проведения заключительных работ так и осталась самой радиационно-опасной.

По данным лабораторных исследований около 83% всех исследуемых проб грунта может быть отнесено к радиоактивным отходам по превышению содержания $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в сравнении с МЗУА для данных радионуклидов. Удельная активность ^{241}Am варьирует в

пределах от <3 до $4,1 \cdot 10^4$ Бк/кг с максимальным превышением МЗУА в 41 раз. Ожидаемое содержание $^{239+240}\text{Pu}$ практически во всех точках может превышать нормативный уровень. Так, максимально возможное значение удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ может достигать $4,5 \cdot 10^5$ Бк/кг. Несмотря на то, что по результатам лабораторных анализов на территории рабочей площадки штольни В2 удельная активность ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ уменьшилась после проведения дезактивационных работ загрязненных радиоактивных участков, остаточное содержание данных радионуклидов значительно превышает допустимые уровни (МЗУА).

5. ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ПРОВЕДЕННЫХ РАБОТ НА РАДИАЦИОННУЮ ОБСТАНОВКУ ПРИПОРТАЛЬНЫХ ПЛОЩАДОК ШТОЛЕН

5.1 Изменение радиационной обстановки по результатам радиометрических и дозиметрических измерений

Данные по максимальным значениям МЭД за период предварительного и заключительного обследования штолен представлены на гистограмме (рисунок 12).

Из гистограммы видно, что максимальные значения МЭД были зафиксированы при проведении предварительного обследования на участках локального загрязнения штолен Г2, В1, В2. Максимальное значение МЭД зафиксировано на штольне В2 – 44 мкЗв/ч. В соответствии с НРБ-99 в случае проведения работ при подобных условиях в течение всего рабочего времени эффективная доза персонала может быть превышена ~ в 4 раза только от внешних источников излучения [4]. Максимальные значения МЭД при проведении заключительного обследования зафиксированы на участках локального загрязнения штолен Г1, Г2, В1.

Можно отметить понижение максимального значения МЭД после проведения работ на штольнях В2, В5, следовательно, по первичной оценке можно

сказать, что проводимые работы позволили снизить уровни радиационного загрязнения на припортовых площадках данных штолен. Наибольшее снижение максимального значения отмечено на штольне В2 и представлено на рисунке 14.

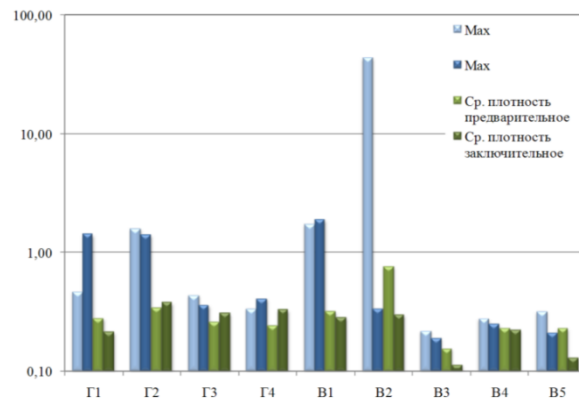


Рисунок 12. Максимальные значения и средняя плотность МЭД за период предварительного и заключительного обследования штолен, мкЗв/ч

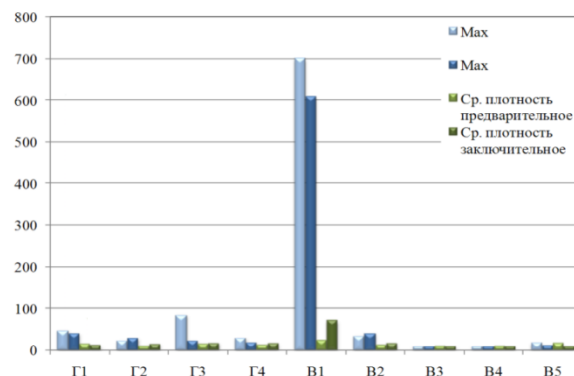


Рисунок 13. Максимальные значения и средняя плотность потока β-частиц за период предварительного и заключительного обследования штолен, част/(мин·см²)

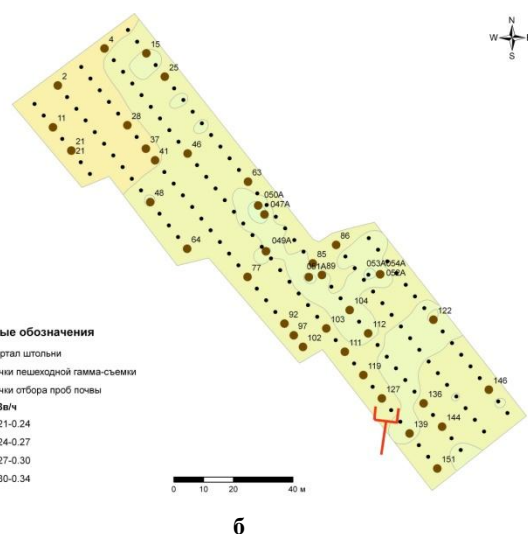
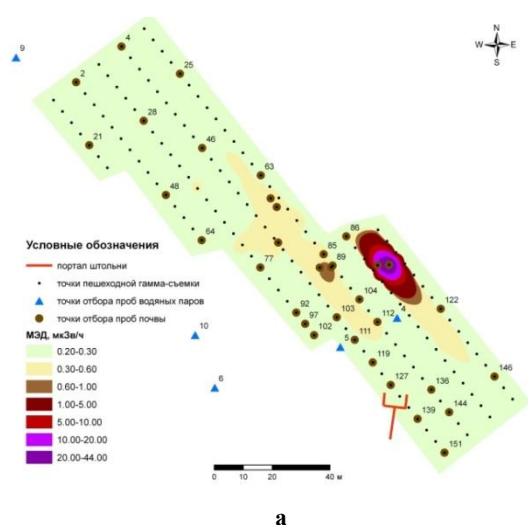


Рисунок 14. Карты-схемы распределения МЭД на территории припортового участка штольни В2 при предварительном (а) и заключительном (б) обследовании

При заключительном обследовании зафиксированы значения МЭД выше, чем при предварительном обследовании на штольнях Г1, В1, следовательно можно предположить, что проводимые работы негативно повлияли на радиационную обстановку на припортальных площадках данных штолен. Распределение МЭД на припортальных площадках данных штолен представлено на рисунках 15, 16.

Однако максимальные значения МЭД в полной мере не характеризуют радиационную обстановку на припортальных площадках, так как не учитывают площадь загрязнения. Для оценки влияния площади загрязнения был проведен расчет средней плотности загрязнения.

Для расчета средней плотности загрязнения была подсчитана площадь для каждой припортальной площадки. По схемам распределения радиационных параметров были определены основные изолинии для каждой штольни в зависимости от диапазона МЭД. Для расчета средней плотности загрязнения были взяты верхние значения диапазона МЭД. После чего рассчитывалась площадь для каждой изолинии. Оценка вклада различных значений МЭД проводилась по отношению площади характеризуемой данными значениями на исследуемой площадке к общей площади площадки в процентном отношении.

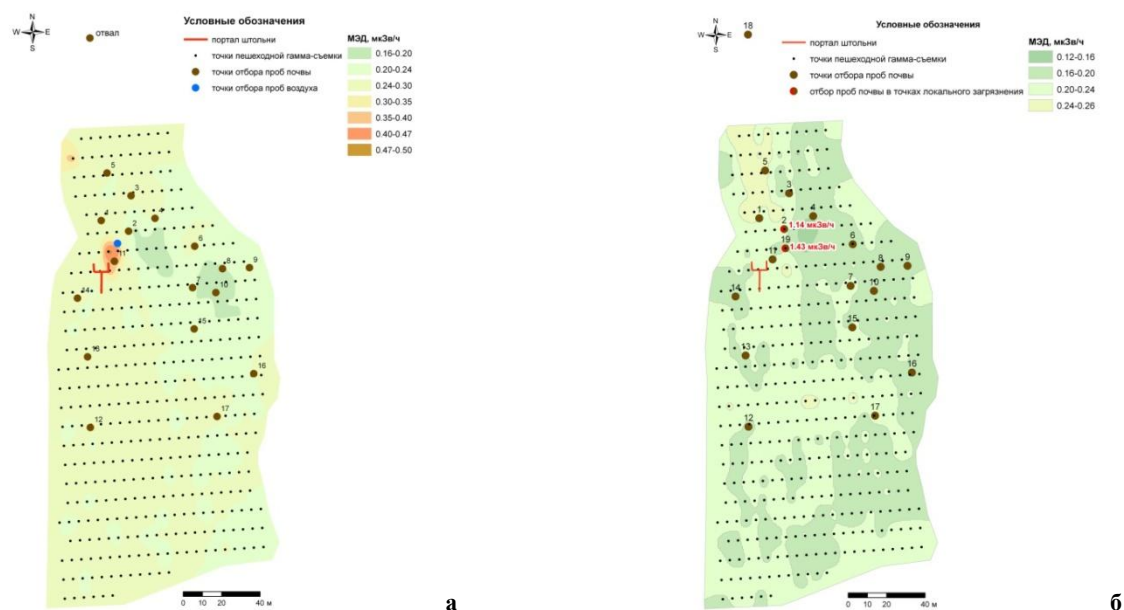


Рисунок 15. Карты-схемы распределения МЭД на территории припортального участка штольни Г1 при предварительном (а) и заключительном (б) обследовании

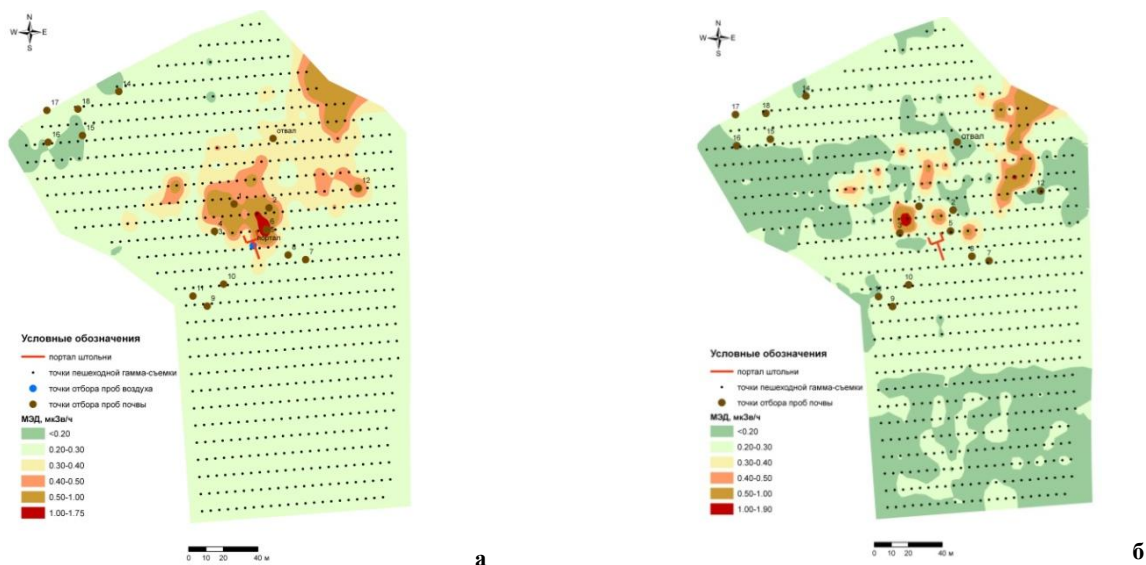


Рисунок 16. Карты-схемы распределения МЭД на территории припортального участка штольни В1 при предварительном (а) и заключительном (б) обследовании

Сравнивая изменения максимальных значений МЭД до и после проведения работ и результатов расчетов средней плотности загрязнения штольни были разделены по характеру изменения радиационной ситуации:

1. штольни, где изменения значений МЭД и средней плотности находятся в рамках погрешности определения данных величин (Г2, Г3, Г4, В3, В4), следовательно проведенные работы никак не повлияли на радиационную обстановку на припортальных площадках;

2. штольни, характеризуемые понижением максимальных значений МЭД и понижением средней плотности загрязнения (В2, В5), что является результатом проведения дезактивационных мероприятий до начала проведения работ;

3. штольни, где повышение максимальных значений МЭД сопровождается незначительным изменением средней плотности (в рамках погрешности определения данной величины) - Г1, В1. Загрязнение площадки имеет локальный характер и может быть обусловлено выносом загрязненного грунта из штольни (Г1) или присутствием вблизи рабочей площадки (В1) объектов повышенной радиационной опасности (отвал, район ручья, водопроявление из штольни).

Данные по максимальным и минимальным измеренным значениям плотности потока β -частиц за период предварительного и заключительного обследования штолен представлены на гистограмме (рисунк 13).

Максимальные значения плотности потока β -частиц были зафиксированы при проведении предварительного и заключительного обследования на участке локального загрязнения штольни В1 (предварительное обследование – 700 част/мин·см², заключительное обследование – 610 част/мин·см²). По первичной оценке можно сказать, что проводимые работы позволили снизить уровни радиационного загрязнения на припортальных площадках штолен Г3, Г4, В1, В5. Так как на территории штолен В3 и В4 как во время предварительного так и во время заключительного обследования измеренные значения плотности потока β -частиц не превысили предела обнаружения используемых средств измерений следовательно проведенные работы не повлияли на радиационную обстановку.

Так же был проведен расчет средней плотности загрязнения для припортальных площадок по данным измерений плотности потока β -частиц при предварительном и заключительном обследовании (рисунок 13). Сравнивая изменения максимальных значений плотности потока β -частиц до и после проведения работ и результатов расчетов средней плотности загрязнения можно разделить штольни по характеру изменения радиационной ситуации:

1. штольни, где изменения значений плотности потока β -частиц и средней плотности находятся в рамках погрешности определения данных величин (Г1, Г2, В2, В3, В4), следовательно проведенные работы никак не повлияли на радиационную обстановку на припортальных площадках;

2. штольни, характеризуемые понижением максимальных значений плотности потока β -частиц при незначительных изменениях, в рамках погрешности, средней плотности загрязнения (Г3, Г4, В5), что является следствием проведения дезактивационных мероприятий до начала работ. Незначительные изменения средней плотности говорит о том, что максимальные значения плотности потока β -частиц зафиксированные при предварительном обследовании были приурочены к локальным пятнам небольшого размера вклад которых в общую среднюю плотность незначителен;

3. штольня В1, характеризуемая повышением средней плотности загрязнения при незначительных изменениях плотности потока β -частиц (в рамках погрешности измерений). Загрязнение площадки обусловлено перераспределением загрязненного грунта объектов повышенной радиационной опасности по территории площадки вследствие проводимых работ;

В результате анализа были сделаны следующие выводы:

1. Г1 – загрязнение площадки, вследствие проведения работ, носит локальный характер и обусловлено выносом грунта с повышенным содержанием γ -излучающих радионуклидов.

2. Г2, В3, В4 – проведение работ не повлияло на радиационную обстановку на территории штольни.

3. Г3, Г4, В2, В5 – дезактивация проведенная на территории припортальной площадки до начала ведения работ улучшила ситуацию на территории припортальной площадки.

4. В1 – загрязнение площадки, вследствие проведения работ, носит локальный характер и обусловлено присутствием вблизи объектов с повышенным содержанием γ -излучающих радионуклидов (отвал), так же зафиксировано перераспределение ранее имеющегося загрязнения β -излучающими радионуклидами на территории припортальной площадки.

5.2 Изменение радионуклидного загрязнения поверхностного слоя почвы

Для оценки изменения радиоэкологической обстановки на исследуемых участках целесообразно проведение сравнительного анализа по изменению максимальных значений удельных активностей техногенных радионуклидов, зафиксированных при предварительном и заключительном этапах работ (рисунок 17).

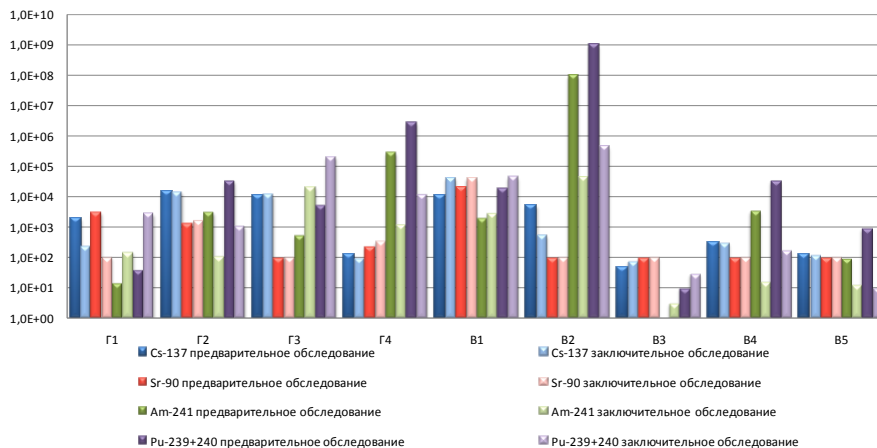


Рисунок 17. Сравнение максимальных значений удельных активностей радионуклидов при предварительном и заключительном обследовании припортовых участков штолен, Бк/кг

Снижение максимальных значений удельных активностей радионуклидов произошло на территории штолен Г2, Г4, В2, В4 и В5, что свидетельствует об улучшении радиоэкологической ситуации на данных объектах. Повышение максимальных значений активностей радионуклидов зафиксировано на четырех штольнях (Г3, В1, В3), при этом на припортовых участках штолен В1 и В3 максимальные значения предварительного и заключительного обследований находятся в пределах погрешности метода определения радионуклидов. На штольне Г1 при понижении максимальных значений удельных активностей ^{137}Cs и ^{90}Sr наблюдается увеличение содержания трансурановых радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$.

Повышение максимальных значений удельных активностей радионуклидов на припортовых участках штолен связано с произошедшим перераспределением техногенных радионуклидов по территории в сравнении с предварительным обследованием, возможно, обусловленное проведением инженерных работ на территории штольни, а загрязнение прилегающей к штольне территории вследствие вторичного переноса.

Для результатов лабораторных исследований каждой обследуемой штольни были рассчитаны средние значения удельных активностей радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Am и $^{239,240}\text{Pu}$. Вычисление среднего значения удельной активности каждого радионуклида для каждой обследуемой припортовой площадки производилось с учетом всех точек отбора проб на данной площадке.

Расчет средних значений удельных активностей радионуклидов в грунте показал улучшение радиационной обстановки и значительное снижение средней удельной активности техногенных радионуклидов на всей исследуемой территории при заключительном обследовании. В большинстве случаев удельная активность данных радионуклидов уменьшилась после проведения мероприятий по снижению радиационной опасности загрязненных радиоактивных участков (Г2, Г4, В2, В4, В5).

Исключением являются территории припортовых участков штолен Г1, Г3, В1 и В3, на которых при заключительном обследовании средние значения удельных активностей превышают значения, полученные при предварительном обследовании. Повышение средних значений связано с перераспределением радионуклидов и проведением инженерных работ на штольнях.

Так как по максимальным и средним значениям сложно в полной мере оценить радиационную обстановку на территории припортовых площадок штолен, был проведен расчет площадного загрязнения. На штольнях Г2, В2, В4 отбор проб грунта для лабораторных анализов был произведен с обхватом всей территории каждого припортового участка. Поэтому только для данных штолен были построены карты-схемы загрязнения радионуклидами ^{137}Cs , ^{241}Am и произведен расчет площадного загрязнения методом подсчета площади изолиний, т.е. непосредственно по данным, полученным в результате проведения гамма-спектрометрического анализа проб.

Значения среднего площадного загрязнения радионуклидом ^{137}Cs припортовой территории штольни Г2 из трех представленных штолен являются самыми максимальными, площадь пятен с содержанием ^{137}Cs более 10^4 Бк/кг уменьшилась с 76 м^2 до 55 м^2 (рисунок 18).

Самой загрязненной по содержанию ^{241}Am при анализе максимальных, средних значений удельных активностей данного радионуклида, а также расчета площадного загрязнения, является припортовая территория штольни В2. Проведенные работы по сооружению дополнительной защиты на данной штольне не привели к усугублению ситуации на припортовом участке, а проведение дезактивационных работ значительно уменьшило количество находящихся на поверхности радионуклидов (рисунок 19). Территория с загрязнением по ^{241}Am более 10^3 Бк/кг уменьшилась более, чем в 2 раза, с $3,5 \cdot 10^3 \text{ м}^2$ до $1,5 \cdot 10^3 \text{ м}^2$.

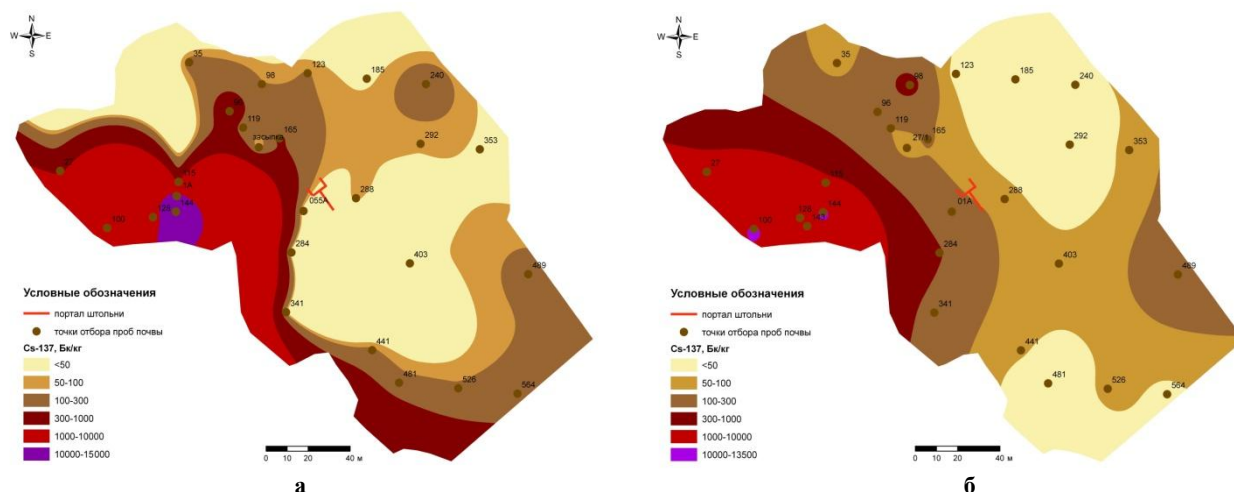


Рисунок 18. Карты-схемы распределения ^{137}Cs на территории припортального участка штольни Г2 при предварительном (а) и заключительном (б) обследовании

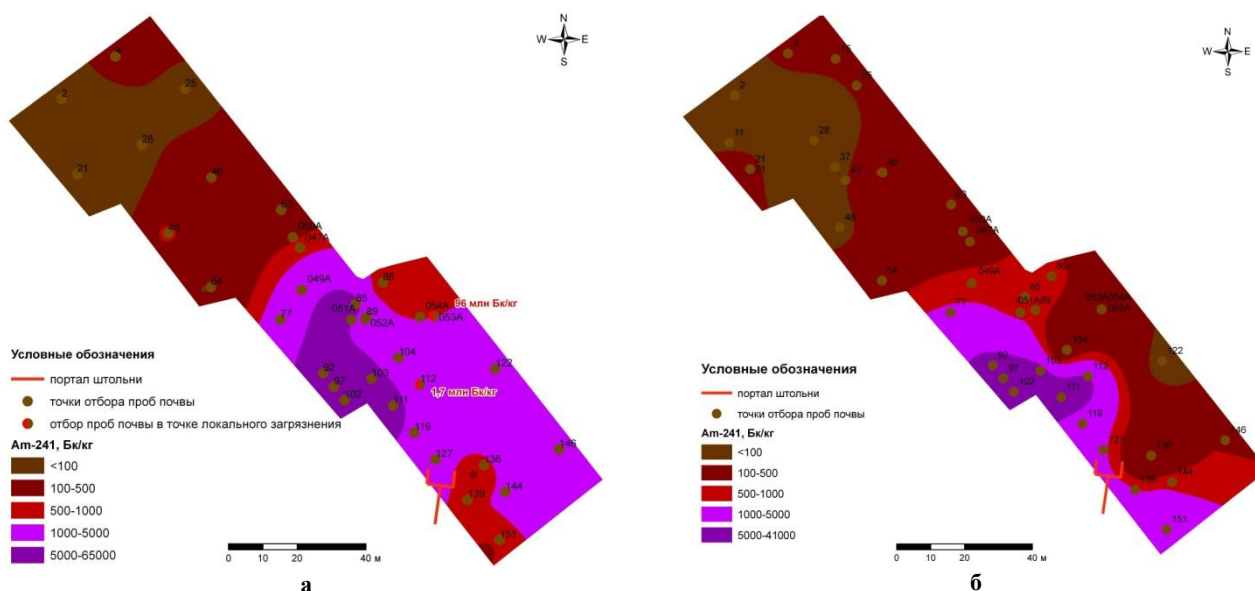


Рисунок 19. Карты-схемы распределения ^{241}Am на территории припортального участка штольни В2 при предварительном (а) и заключительном (б) обследовании

Данный сравнительный анализ по подсчету площадного загрязнения подтверждает тенденцию изменения максимальных и средних значений удельных активностей радионуклидов, в некоторых случаях являясь более консервативным методом, что позволяет не занижать оценку риска для персонала и населения.

По изменению максимальных, средних значений удельных активностей техногенных радионуклидов на обследуемых припортальных участках штолен до и после проведения работ и результатов расчетов среднего площадного загрязнения можно разделить штольни по характеру изменения радиационной ситуации:

1. Штольни, где изменения максимальных и средних значений удельных активностей радионуклидов и средней плотности находятся в рамках погрешности

определения данных величин (Г2, Г4, В2, В4, В5) или наблюдается уменьшение содержания радионуклидов в грунте, следовательно проведенные работы никак не повлияли или улучшили радиационную обстановку на припортальных площадках;

2. Штольни, характеризующиеся понижением содержания радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr по всем критериям оценки и повышением содержания трансураниевых радионуклидов (Г1, Г3), что является следствием проведения дезактивационных мероприятий до начала работ, а также выносом или перераспределением радионуклидов в процессе выполнения работ на штольне;

3. Штольни, характеризующиеся повышением максимальных и средних значений удельных активностей радионуклидов ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ (В1, В3). Загрязнение площадки обусловлено выно-

сом или перераспределением загрязненного грунта по территории площадки вследствие проводимых работ, что привело к увеличению содержания радионуклидов в среднем в 2 раза.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате анализа данных радиоэкологического обследования припортовых площадок штолен горного массива Дегелен до и после проведения работ по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений была дана оценка влияния проведенных работ на радиационную обстановку в районе расположения штолен.

По изменению значений полевых и лабораторных исследований на обследуемых припортовых участках можно разделить штольни по характеру изменения радиационной ситуации:

1. Г2, Г4, В2, В4, В5 – проведение работ не повлияло на радиационную обстановку или зафиксировано улучшение ситуации вследствие проведения дезактивационных работ на выявленных при предварительном обследовании локальных радиационно-загрязненных участках;

2. Г1, Г3, В3 – незначительное загрязнение припортовой площадки трансуроновыми радионуклидами ниже уровней МЗУА для данных радионуклидов, вследствие выноса или перераспределения радионуклидов в процессе выполнения работ на штольне (за исключением штольни Г3, на территории которой увеличение содержания трансуроновых радионуклидов произошло локально с $5,4 \cdot 10^2$ до $2,0 \cdot 10^4$ Бк/кг и не повлекло изменений средних значений активности на участке). Загрязнение штольни В3 довольно условное, так как полученные значения

находятся в рамках погрешности определения данных величин;

3. В1 - загрязнение припортовой площадки техногенными радионуклидами, вследствие проведения работ, носит локальный характер и обусловлено присутствием вблизи объектов с повышенным содержанием радионуклидов

В целом, принятая система организации работ, в большинстве случаев, позволяет обеспечить улучшение радиоэкологической обстановки на припортовых участках штолен. В отдельных случаях загрязнение территории связано с наличием на территории проведения работ объектов с повышенным содержанием техногенных радионуклидов. Например, на территории площадки штольни В1 было обнаружено несколько участков с максимальными радиометрическими параметрами, которые находились в районе пересохшего ручья возле портала штольни. Площадь данных загрязненных участков составила 12 % от общей площади обследуемой территории, а также расположение участков на пути движения автотранспорта явилось причиной перераспределения радионуклидов в илстых фракциях почвы по территории.

При проведении подобных работ в дальнейшем планируется придерживаться подобной системы технологического контроля изменения радиоэкологической обстановки. Однако, при планировании подобных работ в дальнейшем необходимо более индивидуально подходить к организации системы контроля изменения радиоэкологической обстановки при проведении работ на штольнях, вероятность ухудшения радиационной обстановки на которых выше (при проведении работ горизонтальным методом, нахождение вблизи радиационно-опасных объектов).

ЛИТЕРАТУРА

1. Ядерные испытания СССР/ кол. авт. под рук. В.Н. Михайлова. – М.: Издат, 1997. - 304 с.
2. Семипалатинский полигон. Создание, деятельность, конверсия: монография /под ред. проф. В.С.Школьника. – Алматы, 2003. -344 с.
3. Мульгин, С.И. Теоретический расчет наработанных количеств искусственных нуклидов- продуктов деления при проведении взрывов в соляных куполах КГНKM и определении микроконцентраций делящихся актиноидов в неделящихся материалах с помощью трековой методики / С.И. Мульгин. – Алматы, 1999. – 50 с.
4. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99): СП 2.6.1. 758-99; введ. в действие 01.01.2000. – Алматы: Агентство по делам Здравоохранения РК, 1999. - 80с. – ISBN 9965-501-42-4.
5. Санитарно-гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности: СанПиН № 5.01.030.03: утв. приказом Министра здравоохранения РК, 2003. – 74с.
6. Берлянд, М.Е. Современные проблемы атмосферной диффузии и загрязнения атмосферы /М.Е. Берлянд. - Л.: Гидрометеиздат, 1975.
7. Монин, А.С. Атмосферная диффузия и загрязнение воздуха / А.С. Монин. - М., 1962.

**ДЕГЕЛЕҢ ТАУЛЫ МАССИВІНДЕГІ ШТОЛЬНЯЛАРДЫҢ ИНЖЕНЕРЛІК
ҚҰРЫЛЫСТАРЫНА ҚОСЫМША ҚОРҒАУ ҚҰРУ БОЙЫНША ЖҮРГІЗІЛГЕН
ЖҰМЫСТАРДЫҢ ПОРТАЛАЛДЫ ТЕЛІМДЕРДІҢ РАДИАЦИЯЛЫҚ ЖАҒДАЙЫНА ӘСЕРІ**

Коровикова Т.В., Мустафина Е.В., Осинцев А.Ю., Дмитропавленко В.Н., Яковенко Ю.Ю.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Курчатов, Қазақстан

Ядролық қаруды тарату қауіпін азайту мақсатындағы ядролық сынақтардың инфрақұрылымын жою бойынша жұмыстар аясында Семей сынақ полигоны Дегелең таулы массивінің 9 штольнясын қайтадан жабу жүргізілді. Қоршаған орта нысандарының ахуалын бағалау, сондай-ақ аталған штольнялардың порталалды телімдеріндегі жүргізілген жұмыстардың кері әсерінің болу мүмкіндігін бағалау аталған радиоэкологиялық зерттеулердің мақсаты болып табылды. Бақылаудағы әрбір штольняның порталалды телімдеріндегі радиоэкологиялық жағдайдың нәтижелері келтірілген.

**IMPACT OF THE WORKS FOR THE CREATION OF SUPPLEMENTARY PROTECTION
FOR ENGINEERING STRUCTURES OF TUNNELS ON DEGELEN MASSIV
ON THE RADIATION SITUATION OF NEAR-PORTAL AREAS**

T.V. Korovikova, E.V. Mustafina, A.Yu. Ossintsev, V.N. Dmitropavlenko, Yu.Yu. Yakovenko

Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

As part of the nuclear tests infrastructure elimination in order to reduce the threat of nuclear proliferation there was re-conservation of nine tunnels of Degelen massif at Semipalatinsk test site. The aim of these radioecological studies was to evaluate the radio-ecological conditions of the environment, as well as possible negative impact of the works on near-portal areas of these tunnels. The paper presents results of the radiological changes in the situation at near-portal areas of each controlled tunnels.

УДК 621.039.58:621.039.7:541.28:539.16

К ВОПРОСУ ОБ ЭФФЕКТИВНОСТИ ТЕХНОЛОГИИ ПЕРЕРАБОТКИ ЖИДКИХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ РЕАКТОРНОЙ УСТАНОВКИ БН-350

Коровина О.Ю., Лукашенко С.Н., Каширский В.В.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Данная статья посвящена технологии переработки жидких радиоактивных отходов (ЖРО), образовавшихся в результате деятельности реакторной установки на быстрых нейтронах (РУ БН-350), расположенной в г. Актау (Казахстан). Работа основана на теоретических расчетах и экспериментальных исследованиях эффективности основных технологических этапов переработки ЖРО РУ БН-350. Экспериментальные исследования проведены на базе лаборатории радиохимических исследований Института радиационной безопасности и экологии и лаборатории инженерной экологии Института ядерной физики Национального ядерного центра Республики Казахстан. Для исследований использовались образцы жидких радиоактивных отходов, отобранные из емкостей на РУ БН-350, а также модельные растворы, имитирующие химический состав ЖРО. В результате работы были сделаны выводы об эффективности технологии переработки ЖРО РУ БН-350.

ВВЕДЕНИЕ

Одной из основных проблем, определяющих существование и дальнейшее развитие атомной энергетики, является решение задачи эффективной переработки жидких радиоактивных отходов и их надежной утилизации.

Жидкие радиоактивные отходы реакторных установок представляют собой растворы различной степени минерализации, загрязненные продуктами деления, радионуклидами коррозионного происхождения, различными веществами, используемыми для поддержания водно-химического режима и дезактивации оборудования.

Традиционными методами переработки ЖРО являются: глубокое упаривание, цементирование и битумирование. Эти методы позволяют перевести ЖРО в инертную форму, пригодную для захоронения, но не решают проблему больших объемов радиоактивных отходов.

Наибольшее распространение в настоящее время получила технология переработки ЖРО с использованием селективной сорбции, позволяющей сконцентрировать радиоактивные изотопы Cs, составляющие основную радиоактивность ЖРО, в небольшом объеме сорбента. Согласно литературным источникам [1,2], основными технологическими стадиями процесса очистки ЖРО при использовании селективной сорбции являются: предварительная фильтрация и подготовка исходного раствора, окисление органической составляющей ЖРО, фильтрация и непосредственно сорбция. После окисления и фильтрации очищаемый раствор направляют на селективную сорбцию цезия на ферроцианидных сорбентах, в качестве которых, чаще всего, используют неорганический сорбент марки Термоксид-35.

Для переработки ЖРО, накопленных на реакторной установке БН-350, было предложено использовать именно метод селективной сорбции [3]. Согласно исходным данным [4], солесодержание ЖРО составляет 70-605 г/л, объемная активность

10^7 - 10^8 Бк/л. Радиоактивность ЖРО, в основном, обусловлена радионуклидами Cs, Co и Mn.

В 2000-2001 гг. на Мангистауском атомном энергокомбинате были проведены лабораторные и стендовые испытания указанного метода переработки ЖРО. Опытная установка, используемая в экспериментах, состояла из узлов озонирования, фильтрации и сорбции. Конструктивно установка выполнена в виде отдельных модулей: блока емкостей, насосов, арматуры, сорбционных колонок, озонатора [5]. В результате экспериментальных исследований по очистке ЖРО РУ БН-350 было установлено, что стендовая установка позволяет очистить ЖРО по ^{137}Cs до значений 10^{-9} - 10^{-10} Ки/л (3,7-37 Бк/л), по ^{60}Co – 10^{-8} - 10^{-9} Ки/л (37-370 Бк/л) [5]. По другим радионуклидам информация дана в недостаточном объеме. Отсутствовали исходные данные, необходимые для комплексной оценки степени радиационной опасности переработанных отходов.

На основе исходных данных о составе ЖРО в 2002 г. был разработан проект на промышленную установку ионоселективной очистки ЖРО РУ БН-350. Технологический процесс переработки ЖРО, согласно проекту, заканчивался получением очищенного от радионуклидов раствора, который планируется упаривать и в виде сухой соли направлять на хранение на действующий полигон бытовых отходов "Карьер 400" [4].

Используя данные литературного обзора материалов по технологии переработки ЖРО РУ БН-350, а также отчетные исходные данные по составу ЖРО РУ БН-350, можно ожидать присутствие в составе ЖРО радионуклидов, содержание которых необходимо будет учитывать при проведении категоризации отходов и их очистки.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

С целью оценки эффективности основных технологических процессов на стадии переработки ЖРО РУ БН-350 были проведены следующие исследования:

- Определение радионуклидного состава ЖРО РУ БН-350 (теоретическая и экспериментальная оценка).
- Оценка эффективности использования процесса озонирования ЖРО с целью разрушения комплексообразующей составляющей отходов.
- Оценка эффективности очистки ЖРО от изотопов Cs на стадии ионообменной сорбции.

1.1 Определение радионуклидного состава ЖРО РУ БН-350

1.1.1 Теоретическая оценка

При работе в реакторе образуется около 200 радионуклидов (от цинка до гадолиния), состоящих из продуктов деления – радиоизотопов средней части Периодической системы Д.И.Менделеева, неразделившегося урана и радионуклидов наведенной активности [6].

Помимо общеизвестных радионуклидов, образующихся в результате работы ядерного реактора ($^{137,134}\text{Cs}$, ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{90}Sr , изотопы Pu), в отработанном ядерном топливе присутствует множество короткоживущих и долгоживущих радионуклидов, содержание которых обычно не учитывается при переработке основных технологических операций по переработке радиоактивных отходов. В статье [7] представлен ориентировочный радионуклидный состав отработанного ядерного топлива (ОЯТ), только что извлеченного из реактора типа ВВЭР после нескольких лет облучения, согласно которому в 1 тонне ОЯТ содержится 950-980 кг $^{235+238}\text{U}$, 5-10 кг Pu, 1,2-1,3 кг ^{137}Cs , около 770 г ^{99}Tc , около 500 г ^{90}Sr , 500 г ^{237}Np , 120-350 г ^{241}Am , около 200 г ^{129}I , около 60 г ^{242}Cm и ^{244}Cm , 12-15 г ^{151}Sm и т.д.

Согласно данным работы [8], сравнение характеристик РАО реакторов на тепловых и быстрых нейтронах показало, что состав и уровни активности РАО аналогичны. Определены особенности РАО реакторов БН: объем жидких РАО в 2-2,5 раза ниже, твердых РАО – в 1,5-3 раза выше, чем на реакторах ВВЭР, специфические твердые РАО реакторов БН –

жидкометаллический натриевый теплоноситель, ловушки и адсорберы, содержащие натрий.

Таким образом, используя вышеприведенные данные по ориентировочному составу ОЯТ реактора на тепловых нейтронах типа ВВЭР [7], был проведен расчет возможного радионуклидного состава 1 тонны ОЯТ РУ БН-350 на настоящий момент. Учитывая тот факт, что основным радионуклидом, составляющим большую радиоактивность отходов, является ^{137}Cs , был проведен расчет соотношения каждого долгоживущего радионуклида к активности ^{137}Cs . По данным соотношениям и количественным данным об активности ^{137}Cs в ЖРО РУ БН-350 (10^7 - 10^8 Бк/кг, [3]), был определен ориентировочный радионуклидный состав ЖРО РУ БН-350. При этом было принято, что:

- при переходе радионуклидов из ОЯТ в растворы ЖРО происходит их равномерное растворение, т.е. отношение радионуклидов друг к другу не меняется;
- момент извлечения топлива из реактора – 01.12.1999 г.;
- данные по короткоживущим радионуклидам и радионуклидам наведенной активности не используются в расчете;
- при условии присутствия нескольких изотопов одного элемента активность рассчитывалась по радионуклиду с большим периодом полураспада.

Результаты расчетов представлены в таблице 1.

Проведенные теоретические расчеты показывают, что значения активности основных долгоживущих радионуклидов в ЖРО РУ БН-350 значительно превышают нормативные уровни (НРБ-99). При переработке технологии переработки данных ЖРО следует ожидать в составе отходов следующие радионуклиды: ^{238}U , ^{239}Pu , ^{137}Cs , ^{99}Tc , ^{90}Sr , ^{237}Np , ^{241}Am , ^{129}I , ^{244}Cm , ^{151}Sm . Причем, наибольший вклад в радиоактивность отходов будут вносить ^{137}Cs и ^{90}Sr .

С целью подтверждения расчетных данных, были проведены экспериментальные исследования по определению радионуклидного состава ЖРО РУ БН-350.

Таблица 1. Результаты расчетов ориентировочного радионуклидного состава ОЯТ и ЖРО РУ БН-350 на 01.01.2010 г.

Радионуклид	Расчетная удельная активность в ОЯТ, Бк/г	Отношение Радионуклид / ^{137}Cs	Расчетная удельная активность в ЖРО, Бк/кг	Удельная активность в декантате на 01.09.03 г., Бк/кг	УВ (НРБ-99), Бк/кг
^{238}U	$1,2 \cdot 10^{10}$	1:215 000	$2,2 \cdot 10^3$	Не определялась	3,1
^{239}Pu	$2,3 \cdot 10^{13}$	1:114	$4,2 \cdot 10^6$	Не определялась	$5,6 \cdot 10^{-1}$
^{137}Cs	$3,4 \cdot 10^{15}$	1:1	$4,8 \cdot 10^8$	10^7 - 10^8	11,0
^{99}Tc	$4,8 \cdot 10^{11}$	1:5400	$8,9 \cdot 10^4$	Не определялась	$2,2 \cdot 10^2$
^{90}Sr	$2,0 \cdot 10^{15}$	1:1,3	$3,8 \cdot 10^8$	Не определялась	5,0
^{237}Np	$1,3 \cdot 10^{10}$	1:200 000	$2,4 \cdot 10^3$	Не определялась	1,3
^{241}Am	$4,4 \cdot 10^{13}$	1:59	$8,1 \cdot 10^6$	Не определялась	$6,9 \cdot 10^{-1}$
^{129}I	$1,3 \cdot 10^9$	1:1 995 000	$2,4 \cdot 10^2$	Не определялась	1,3
^{244}Cm	$1,3 \cdot 10^{14}$	1:20	$2,3 \cdot 10^7$	Не определялась	1,2
^{151}Sm	$1,4 \cdot 10^{13}$	1:190	$2,5 \cdot 10^6$	Не определялась	$1,4 \cdot 10^3$

1.1.2 Экспериментальная оценка

Объектом исследований являлись образцы жидких радиоактивных отходов РУ БН-350, отобранные из емкостей Б-02/2, Б-02/3, Б-02/5, а также модельные растворы.

Методология исследований

Для определения радионуклидного состава ЖРО РУ БН-350 были отобраны 3 образца ЖРО. Для проведения лабораторного анализа радионуклидного состава ЖРО использовались как аттестованные методики [9-12], так и модифицированные. Содержание гамма-излучающих радионуклидов определялось с помощью гамма-спектрометра, состоящего из полупроводникового детектора Canberra GX-2020 расширенного диапазона с относительной эффективностью регистрации 20%. Для более чувствительного определения ^{241}Am использовалась дополнительная операция предварительного удаления ^{137}Cs соосаждением на фосфомолибдате аммония. Для этого после последовательного выделения радионуклидов $^{239+240}\text{Pu}$ методом экстракционной хроматографии из фильтрата выделялся $^{134,137}\text{Cs}$ двух-, трехкратным соосаждением с фосфомолибдатом аммония. Фильтрат поступал на гамма-спектрометрический анализ с целью определения ^{241}Am , ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{125}Sb . Затем, после измерений из фильтрата выделялся ^{90}Sr с использованием метода соосаждения ^{90}Sr с карбонатом кальция. Определение содержания ^{90}Sr проводилось на бета-спектрометре TriCarb-2900.

Определение содержания изотопов Pu проводилось альфа-спектрометрическим методом с предварительной радиохимической очисткой образца. Измерения спектрометрического образца проводились на альфа-спектрометре Canberra 7401.

Лабораторные исследования состава ЖРО

В результате лабораторных исследований образцов ЖРО РУ БН-350 были получены количественные данные по радионуклидному составу отходов из емкостей Б-02/2, Б-02/3, Б-02/5. В таблице представлены усредненные данные, полученные в результате анализов, проведенных двумя лабораториями На-

ционального ядерного центра РК, а также результаты исследований, полученные при разработке рабочего проекта комплекса по переработке жидких радиоактивных отходов РУ БН-350 (таблица 2).

В результате проведения дополнительных исследований были подтверждены расчетные и литературные данные, свидетельствующие о том, что основным загрязняющим радионуклидом ЖРО РУ БН-350 является Cs. В целом, подтверждены и проектные данные по ряду других гамма-излучающих радионуклидов: ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{125}Sb , ^{22}Na [14]. Однако в ходе лабораторных исследований также были получены данные, свидетельствующие о наличии значительного количества таких радионуклидов, как ^{241}Am , изотопы Pu и ^{90}Sr .

При определении содержания ^{90}Sr по находящемуся с ним в равновесии ^{90}Y были получены данные, по которым можно предположить, что в ЖРО РУ БН-350 содержится ^{151}Sm . При проведении исследований образцов ЖРО наблюдалось отклонение от ожидаемой кривой распада ^{90}Y , что свидетельствовало о наличии другого радиоактивного изотопа, по химическим свойствам сходным с иттрием и имеющим больший период полураспада. Таким изотопом может являться ^{151}Sm .

В ходе экспериментальных исследований ЖРО РУ БН-350 не определялось содержание ^{99}Tc , ^{237}Np , ^{129}I , ^{244}Cm , однако, согласно теоретической оценке, наличие данных радионуклидов в отходах ЖРО РУ БН-350 следует ожидать и учитывать при разработке технологии переработки ЖРО.

Для оценки эффективности очистки ЖРО от основных загрязняющих радионуклидов (изотопов Cs, ^{60}Co , ^{54}Mn) были проведены экспериментальные исследования эффективности основных технологических операций, предлагаемых проектом по переработке ЖРО РУ БН-350: процесса озонирования и ионообменной сорбции. Исследования проводились с использованием модельных растворов с известным радионуклидным составом.

Таблица 2. Радионуклидный состав ЖРО РУ БН-350

Радионуклид (ед.изм.)	Содержание радионуклида, Ауд					
	Емк.Б-02/2		Емк.Б-02/3		Емк.Б-02/5	
	*	**	*	**	*	**
^{241}Am , (кБк/л)	9 ± 2	нет данных	18 ± 1	нет данных	18 ± 2	нет данных
^{134}Cs , (кБк/л)	39 ± 6	270	20 ± 3	96	15 ± 2	260
^{137}Cs , (МБк/л)	123 ± 18	63	53 ± 8	185	113 ± 17	22
^{60}Co , (кБк/л)	15 ± 3	11	6 ± 1	37	25 ± 4	1,9
^{54}Mn , (кБк/л)	< 5	нет данных	< 2	1,5	< 8	нет данных
^{125}Sb , (кБк/л)	< 12	нет данных	< 13	нет данных	< 20	нет данных
^{22}Na , (кБк/л)	< 7	нет данных	< 3	нет данных	< 5	нет данных
$^{239+240}\text{Pu}$, (кБк/л)	< 1	нет данных	2,1 ± 0,5	нет данных	6,2 ± 1,3	нет данных
^{90}Sr , (кБк/л)	65 ± 15	нет данных	30 ± 10	нет данных	80±20	нет данных
Примечание: * - результаты исследований Национального ядерного центра Республики Казахстан ** - результаты исследований, представленные в [13]						

1.2 Оценка эффективности использования процесса озонирования ЖРО с целью разрушения комплексобразующей составляющей отходов

В рамках данной задачи проводилась экспериментальная оценка технологии окисления комплексобразующей составляющей ЖРО путем озонирования. В результате озонирования происходит разрушение органической составляющей ЖРО и "высвобождение" органически связанных радионуклидов, таких как ^{60}Co и ^{54}Mn .

Из литературных источников известно, что обычно в качестве окислителя используется перманганат калия в щелочной среде. Применение других окислителей, таких, как перекись водорода, азотная кислота в присутствии катализатора и других химических окислителей оказалось малоэффективным [15-18]. Высокоэффективным окислителем трилона Б является гидроксильный радикал, образующийся, например, в реакции разложения перекиси водорода под действием УФ света. Однако его применение оказывается неэффективным для растворов с высоким содержанием солей [19], к которым относятся ЖРО РУ БН-350.

Наиболее эффективно применение в качестве окислителя озона. Озон обладает более высокой окисляющей способностью, чем большинство применяемых окислителей. Кроме того, озон эффективно окисляет органические вещества в растворах с высоким солевым фоном [20].

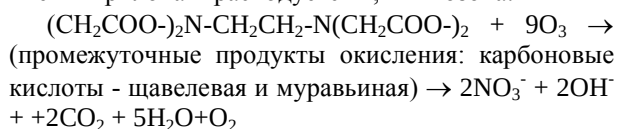
Задачей данных исследований являлась оценка эффективности применения процесса озонирования при очистке ЖРО РУ БН-350 от радионуклидов. При проведении исследований основное внимание было уделено изучению деструкции этилендиаминтетраацетату натрия – ЭДТА (трилон Б), который чаще всего используется в атомной отрасли в качестве дезактивирующего вещества.

Для окисления трилона Б использовался озонатор, производительность которого составляет 10,5 г/час по озону. Озонолиз проводился в реакционной емкости объемом 2000 мл. Температура исследуемых растворов составляла около 20°C.

Для экспериментальной оценки эффективности окисления комплексосоставляющей ЖРО был приготовлен модельный раствор, где содержание трилона Б составляло 130 г/л. Использование растворов с большей концентрацией нецелесообразно, т.к. происходит перенасыщение раствора и выпадение осадка.

Результаты исследований

По теоретическим расчетам, согласно стехиометрии реакции окисления, на окислительное разложение 1 г трилона Б расходуется 1,412 г озона:



Результаты экспериментальных исследований окисления трилона Б озоном, полученные в лабораторных условиях, представлены на рисунке 1.

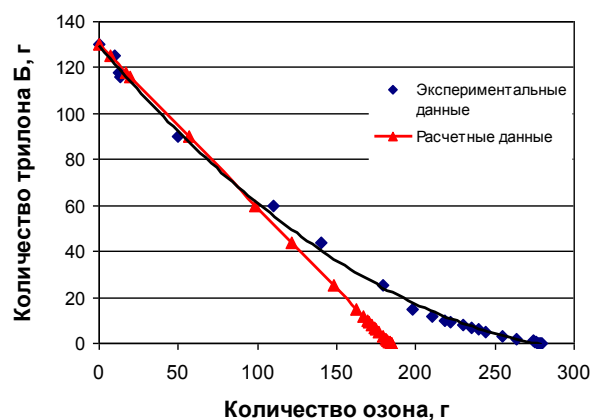


Рисунок 1. Изменение содержания трилона Б при озонолизе

Согласно полученным данным установлено, что для окислительного разложения 1 г трилона Б при его концентрации в растворе от 130 до 60 г/л расходуется 1,4 г озона, при уменьшении концентрации трилона Б в растворе от 60 до 1 г/л расход озона увеличивается от 1,4 до 2,2 г на 1 г трилона Б.

Учитывая полученные экспериментальные данные (среднее соотношение трилона Б к озону при окислении 1:2), а также производительность промышленного озонатора (2,5 кг/час по озону [21]), планируемого при переработке ЖРО РУ БН-350, при типичной концентрации трилона Б в растворе ЖРО (30 г/л, [22]) и объеме декантата ЖРО в одной емкости около 1500 м³ (1 500 000 л) потребуется 99 000 кг озона. Если при реализации проекта будет использована одна озонирующая установка данной мощности, то для переработки 1500 м³ ЖРО РУ БН-350 потребуется 1650 дней непрерывной работы (около 4,5 лет). Принимая во внимание тот факт, что работа с данными ЖРО будет проходить во вредных условиях (1700 часов в год), то время окисления отходов с помощью одной озонирующей установки может увеличиться до 23 лет.

Следует учитывать, что проведенные расчеты не принимают во внимание наличие в растворах ЖРО других соединений, которые также необходимо будет разрушить для очистки ЖРО от радионуклидов и для которых потребуется дополнительное количество озона. При этом необходимо учитывать, что при уменьшении pH раствора на стадии окисления трилона Б при образовании промежуточных продуктов окисления (щавелевой и муравьиной кислот) расход озона в кислой среде будет увеличиваться.

Таким образом, исследования процесса окисления комплексобразующей ЖРО, в качестве которой использовался трилон Б, показали, что расход озона изменяется в зависимости от общего количе-

ства комплексообразователя в растворе. По консервативному расчету, для окисления комплексообразующей ЖРО из одной емкости при работе во вредных условиях труда потребуется 23 года работы одной озонирующей установки. Согласно полученным результатам, учитывая проектные данные [13], где расчетное время переработки ЖРО РУ БН-350 составляет 5 лет, а расчетное количество накопленных ЖРО – 5000 м³, необходимое количество озонирующих установок должно быть не менее 16 штук.

1.3 Определение эффективности очистки ЖРО на стадии ионообменной сорбции

После разрушения органической составляющей ЖРО и очистки отходов от ⁶⁰Со и ⁵⁴Мп проектом предусмотрена сорбционная очистка ЖРО РУ БН-350 от основного радиоактивного загрязнителя – изотопов Cs.

В проекте переработки ЖРО РУ БН-350 [5] рекомендуется в качестве ферроцианидного сорбента использовать Термоксид-35: сферогранулированный сорбент на основе ферроцианида никеля на неорганическом носителе – гидроксиде циркония.

При проведении экспериментальной оценки эффективности очистки ЖРО от радионуклидов Cs на стадии ионообменной сорбции использовались модельные растворы с различными концентрациями трилона Б и известной активностью радиоактивного носителя ¹³⁴Cs. Модельные растворы пропускали через неподвижный слой сорбента (Термоксид-35) с постоянной скоростью, pH среды составляла 3÷4. Результаты проведенных исследований представлены на рисунке 2. Для более детального исследования процессов сорбции Cs ферроцианидами были проведены экспериментальные исследования извлечения изотопов Cs из растворов с различным содержанием трилона Б с помощью свежеприготовленной суспензии ферроцианида меди. Результаты представлены на рисунке 3. Полученные результаты показали, что в кислой среде при pH=3÷4 цезий хорошо сорбируется на Термоксиде-35 из растворов три-

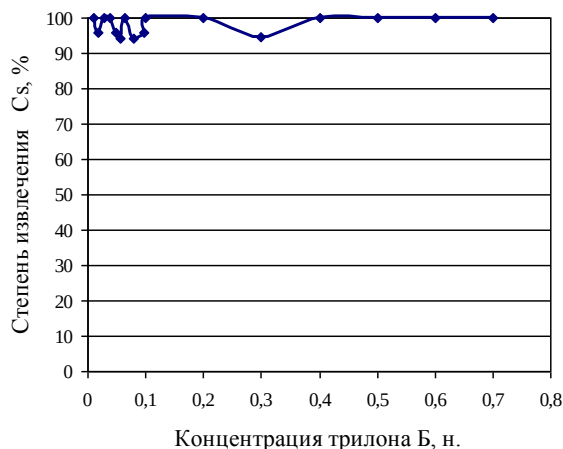


Рисунок 2. Зависимость степени извлечения ¹³⁴Cs от содержания в растворе трилона Б с использованием Термоксида-35 при pH=3÷4

лона Б различной концентрации (очистка 90-100%). Установлено, что наименьшая степень очистки растворов от Cs (90%) при pH=3-4 происходит при концентрации в растворе трилона Б 0,04 н. (7 г/л).

Осаждение Cs из раствора при использовании ферроцианида меди наиболее полно протекает в присутствии трилона Б в диапазоне концентраций от 0,05 н. (9 г/л) до 0,7 н. (130 г/л) и значении pH=2. При концентрации трилона Б от 0,02 до 0,05 н. при pH=2 извлечение Cs составляет ниже 100%. В остальных случаях степень извлечения Cs из раствора в присутствии трилона Б не превышает 65%, а начиная с pH=6 сорбция Cs из раствора вообще не происходит. При данных условиях сорбент, извлекающий Cs из раствора (ферроцианид меди), растворяется.

Степень извлечения ¹³⁴Cs зависит от pH среды. При низких значениях pH (до 3,5-4 при добавлении суспензии) в растворе трилона Б происходит диссоциация этилендиаминтетраацетата натрия с образованием комплексон-иона и иона натрия, при этом комплексон-ион взаимодействует с ионом меди, входящей в состав гексацианоферрата меди. Результат данного взаимодействия – растворение суспензии - сорбента ¹³⁴Cs. Согласно справочным данным [23], соединение комплексон-иона с ионом меди (этилендиаминтетраацетат меди) имеет константу устойчивости 18,8, в связи с чем, обладает большей химической устойчивостью, чем комплексонат натрия, константа устойчивости которого равна 1,66. Химическая реакция, протекающая при данном взаимодействии, представлена в виде химического уравнения реакции:

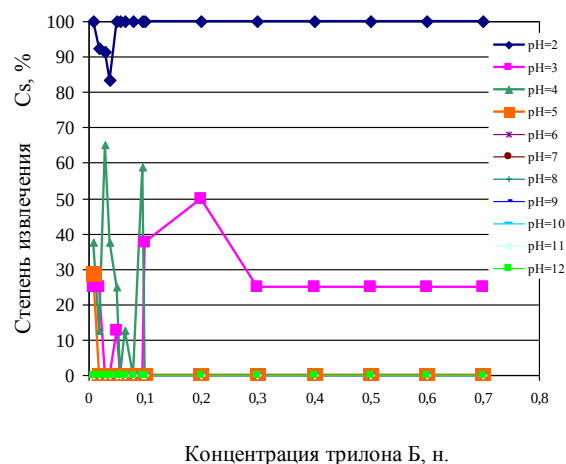
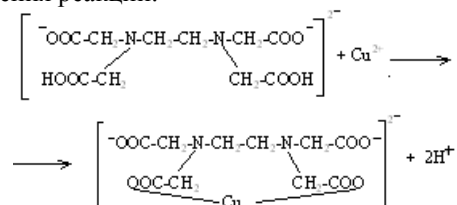


Рисунок 3. Зависимость степени извлечения ¹³⁴Cs от содержания в растворе трилона Б с использованием ферроцианида меди при различных значениях pH

Таким образом, при различных значениях pH среды происходит смещение химического равновесия в системе сорбент – раствор, результатом чего является растворение сорбента и уменьшение степени извлечения Cs из растворов ЖРО.

Так как известно, что pH среды, предлагаемое технологией по переработке ЖРО РУ БН-350, составляет 9-10 [5], было исследовано влияние данного параметра на степень извлечения Cs из модельных растворов при очистке с помощью Термоксида-35. Учитывая описанные выше результаты исследований на Термоксида-35, был выбран модельный раствор с концентрацией трилона Б 0,03 н. (5,4 г/л), при которой очистка от Cs составила 100%. На основе данного модельного раствора было приготовлено 13 растворов с различным значением pH (от 1 до 13). Растворы были пропущены через ионообменную колонку с Термоксида-35. Результаты исследований представлены графически на рисунке 4.

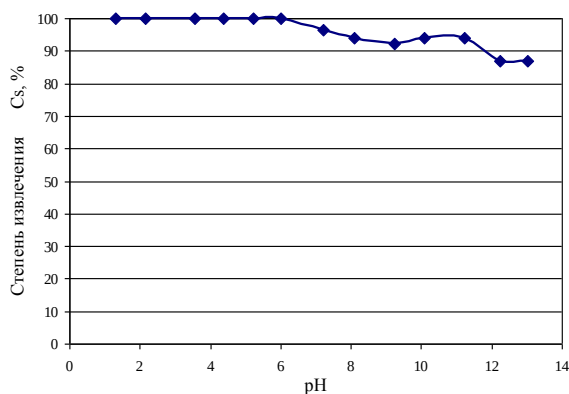


Рисунок 4. Зависимость степени извлечения ^{134}Cs из модельного раствора с помощью Термоксида-35 от pH раствора при содержании трилона Б 5,4 г/л

Из приведенного графика видно, что степень сорбции ^{134}Cs на Термоксида-35 из модельных растворов на основе трилона Б в диапазоне pH среды от 2 до 6 составляет 100%. Уменьшение степени очистки до 87% происходит при увеличении pH от 7 до 13. Из паспортных данных на Термоксида-35 известно, что при pH более 11 происходит разрушение ферроцианидного сорбента, в связи с чем, предпочтительным диапазоном pH являются значения от 2 до 6.

Отдельно был рассмотрен случай при pH=12 и концентрации трилона Б 0,03 н. (5,4 г/л). Так как в результате исследований определено, что при данном значении pH наблюдается наименьшая степень очистки от ^{134}Cs при использовании Термоксида-35, то было проведено экспериментальное исследование с целью определения стадийности очистки модельного раствора при пропускании через сорбент порций модельного раствора. Общий объем раствора составил 120 мл, удельная активность ^{134}Cs в растворе 0,08 Бк/мл. 1 порция раствора составила 1 колоночный объем (40 мл). Скорость пропускания рас-

творов через колонку составила 1 колоночный объем в час. После прохождения одного колоночного объема через Термоксида-35, раствор, прошедший через сорбент, отправлялся на гамма-спектрометрические исследования. Результаты исследований представлены на рисунке 5.

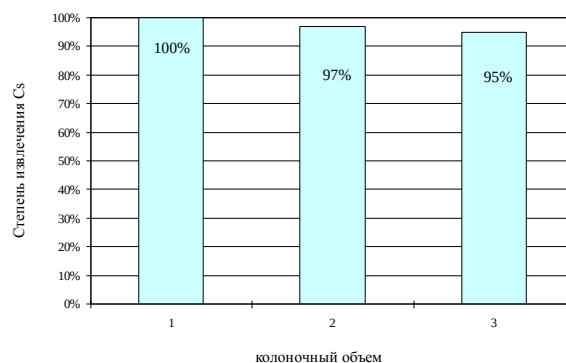


Рисунок 5. Зависимость степени извлечения ^{134}Cs из модельного раствора с помощью Термоксида-35 от колоночного объема раствора при содержании трилона Б 5,4 г/л и pH=12

Из полученных данных видно, что при прохождении через сорбент (Термоксида-35) одного колоночного объема модельного раствора с удельной активностью ^{134}Cs 0,08 Бк/мл происходит 100% извлечение ^{134}Cs из раствора. При увеличении колоночного объема раствора, проходящего через тот же самый сорбент, степень извлечения ^{134}Cs из раствора уменьшается до 95%. При этом, если учесть все количество ^{134}Cs , прошедшее через сорбент, степень очистки раствора от ^{134}Cs составит около 89%.

Таким образом, установлено, что при содержании в растворе комплексообразователя трилона Б в количестве до 20 г/л степень извлечения изотопов цезия сорбентом (Термоксида-35) не постоянна и составляет около 90%. Если учитывать, что в настоящее время в среднем на РУ БН-350 содержатся отходы с активностью по ^{137}Cs 10^7 - 10^8 МБк, то 10% активности ^{137}Cs , которые останутся в растворе, составят 10^6 - 10^7 МБк. Очищенные с помощью сорбента жидкие отходы все равно будут попадать под категорию ЖРО.

Проведенные исследования показывают, что наилучшие результаты по очистке ЖРО от изотопов цезия были получены при pH от 2 до 6. В материалах по технологии переработки ЖРО РУ БН-350 данный диапазон смещен в сторону щелочной среды (9-10), что в сравнении с экспериментальными данными является неоправданным, т.к. при данных значениях pH происходит неполная очистка ЖРО, при которой около 10% активности Cs останется в растворе.

Выводы

1. В результате теоретической и экспериментальной оценки радионуклидного состава ЖРО РУ БН-350 были подтверждены проектные данные, свидетельствующие о том, что основным загрязняющим радионуклидом ЖРО РУ БН-350 является Cs. В це-

лом, подтверждено наличие в ЖРО других радионуклидов: ^{60}Co , ^{54}Mn , ^{125}Sb , ^{22}Na . В результате исследований получены количественные данные о присутствии в ЖРО РУ БН-350 таких радионуклидов, как ^{241}Am , изотопы Pu и ^{90}Sr , содержание которых не учтено при разработке проекта по переработке ЖРО. В ходе исследований не определялось содержание ^{99}Tc , ^{237}Np , ^{129}I , ^{244}Cm , ^{151}Sm , однако, согласно теоретической оценке, наличие данных радионуклидов в отходах ЖРО РУ БН-350 следует ожидать и учитывать при разработке технологии переработки ЖРО.

2. Согласно проведенным экспериментальным исследованиям по консервативной оценке определено, что для окисления комплексобразующих веществ ЖРО РУ БН-350 объемом 5000 м³, при использовании озонирующих установок с проектной мощностью 2,5 кг/час по озону, потребуется 16 озонаторов, которые будут эксплуатироваться в течение 5 лет (с учетом рабочего времени во вредных условиях труда). При оптимистичном расчете, где озонирующая установка будет использоваться непрерывно в течение 5 лет, количество установок должно быть не менее 3 штук.

3. При очистке ЖРО РУ БН-350 от изотопов Cs методом ионоселективной сорбции важным контролируемым параметром является концентрация в отходах трилона Б и pH среды. При концентрации в ЖРО трилона Б 20 г/л в растворе остается около 10% изотопов Cs , что по активности может составить 10^6 - 10^7 МБк. Наилучшие показатели очистки ЖРО на стадии ионоселективной сорбции изотопов Cs из растворов ЖРО получены при pH от 2 до 6. При повышении pH до 9-10 в растворе останется до 10% активности Cs .

Авторы статьи выражают благодарность сотрудникам "МАЭК-Казатомпром", оказавшим неоценимую помощь в проведении данной работы и предоставившим возможность отобрать образцы ЖРО БН-350 для исследований, а именно: Пустобаеву С.Н., Пугачеву Г.П., Ровнейко А.В., Пиеничных В.С., Нестерцову Г.Д., а также сотрудникам Института ядерной физики, участвующим совместно в лабораторных экспериментах по данной работе.

ЛИТЕРАТУРА

1. Технология переработки плавов, накопленных на АЭС / А.П. Кобелев, А.Е. Савкин, О.Г. Синякин, Е.А. Качалова, А.Н. Сороколетова, В.Р. Нечаев // Стратегия безопасности использования атомной энергии: междунар. конф. - Санкт-Петербург: ГУП МосНПО «Радон», 2006.
2. Метод ионоселективной очистки жидких радиоактивных отходов атомных станций / А.Э. Арустамов, А.В. Зинин, П.В. Красников, Ю.П. Прилепо, В.В. Перевезенцев, А.Е. Савкин, А.А. Свитцов, С.Б. Хубецов. - Москва: ЗАО «РАОТЭХ», 2006.
3. Проведение сравнительного анализа методов обращения с солевыми растворами, выбор конкретного метода и разработка технологии обращения с очищенными солевыми растворами, включая схему откачки, способ транспортировки и требования к хранению: отчет / Д.И. Зеленский, Ю.Л. Истомин. - Москва: ЗАО «МЭТР», 2003.
4. Комплекс по переработке жидких неорганических радиоактивных отходов РУ БН-350. Проект. Оценка воздействия на окружающую среду. Пояснительная записка. 8702-ОВОС-ПЗ. - Москва: ЗАО «МЭТР», 2004.
5. Исследования режимов переработки жидких радиоактивных отходов реактора БН-350: отчет о НИР. - Москва: МосНПО «Радон», 2001. - С. 11-28.
6. Медицинские последствия аварии на Чернобыльской АЭС (16 лет спустя) / И.Я. Василенко, О.И. Василенко. Москва: Государственный научный центр. Институт биофизики, 2002.
7. Невозможная связь атомной энергетики с атомным оружием / под ред. А.В. Яблоков. - Москва: СПАН Беллона, 2005. Интернет-ресурс <http://www.bellona.ru/reports/yablokov>.
8. Скворцов, А.И. Обращение с радиоактивными отходами при выводе из эксплуатации реактора на быстрых нейтронах / А.И. Скворцов. - СПб., 2007. - 182 с. Интернет-ресурс <http://www.rsl.ru/index.php?doc=104>.
9. МИ 2143-91 № 5.06.001.98 Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре. Рекомендация. Государственная система обеспечения единства измерений. - Введ. 1998-06-02. - 1991. - 17с.
10. Методика измерения активности радионуклидов с использованием сцинтилляционного бета-спектрометра с программным обеспечением «Прогресс». - Менделеево: ГНМЦ «ВНИИФТРИ», 2004. - 30 с.
11. «Методика определения содержания искусственных радионуклидов плутония-(239+240), стронция-90 и цезия-137 в природных водах методом концентрирования», Алматы, 2001 г.
12. Методика определения искусственных радионуклидов $^{239+240}\text{Pu}$, ^{90}Sr в объектах окружающей среды, КЗ.07.00.00471-2005.
13. Разработка рабочего проекта комплекса по переработке жидких радиоактивных отходов РУ БН-350, включающий установку ионоселективной очистки и установку цементирования ЖРО с их размещением в отдельном здании. Техническое задание. - Москва: ЗАО «РАОТЭХ», 2002. - С.21-22.
14. Комплекс по переработке жидких неорганических радиоактивных отходов РУ БН-350. Здания 157, 157А, 155. Проект. Технологические решения. Т. 4. Ч. 1. Книга 1. - Москва, ЗАО «МЭТР», 2004. - С.11-12.
15. Шилов, В.П. Гетерогенно-каталитическое разложение комплексонов / В.П. Шилов, В.И. Дзюбенко, Л.Н. Астафурова, Н.Н. Крот // ЖПХ. - 1990. - Т.63. - № 2. - С.348-353.
16. Крот, Н.Н. Способ разложения комплексонов в азотнокислых растворах / Н.Н. Крот, В.П. Шилов, В.И. Дзюбенко [и др.] // Радиохимия. - 1994. - Т.36. - №1. - С. 19-24.

17. Shilov, V.P. Investigation on Application of Homogeneous and Heterogeneous Catalysis for Alkaline Waste Treatment: Report PNNL-11623 UC-2030 / V.P. Shilov, A.A. Bessonov, A.Y. Garnov [et al.]. - Richland, Washington (USA): Pacific Northwest National Laboratory, 1997.
18. Гарнов, А.Ю. Каталитическое разложение органических анионов в щелочных радиоактивных отходах. 1. Окисление ЭДТА / А.Ю. Гарнов, В.П. Шилов, А.В. Гоголев [и др.]. // Радиохимия. - 2002. - Т.44. - № 5. - С. 437-442.
19. Селиверстов, А.Ф. Окислительное разложение ЭДТА в водных растворах при действии УФ разложения / А.Ф. Селиверстов, Б.Г. Ершов, Ю.О. Лагунова [и др.]. // Радиохимия. - 2008. - Т.50. - №1. - С.62-65.
20. Рабинович, В.А. Краткий химический справочник / В.А. Рабинович, Хавин З.Я. - М.: Химия, 1977. - С.376.
21. Комплекс по переработке жидких неорганических радиоактивных отходов РУ БН-350. Здания 157, 157А, 155. Проект. Технологические решения. Т. 4. Ч. 1. Книга 1. - Москва: ЗАО «МЭТР», 2004. - С.13.
22. Ампелогова, Н.И. // Дезактивация в ядерной энергетике / Н.И. Ампелогова, Ю.М. Симановский, А.А. Трапезников. - М.: Энергоатомиздат, 1982. - С.256.
23. Никольский, Б.П. Справочник химии / Б.П. Никольский. Т.3. - М.: Химия, 1966. - С.162-163.

ЖН-350 РЕАКТОРЛЫҚ ҚОНДЫРҒЫСЫНЫҢ СҰЙЫҚ РАДИОАКТИВТІ ҚАЛДЫҚТАРЫН ҚАЙТА ӨНДЕУ ТЕХНОЛОГИЯСЫНЫҢ ТИІМДІЛІГІ ЖАЙЛЫ МӘСЕЛЕГЕ

Коровина О.Ю., Лукашенко С.Н., Каширский В.В.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Курчатов, Қазақстан

Бұл мақала Ақтау қ. (Қазақстан) орналасқан жылдам нейтрондардағы реакторлық қондырғы (ЖН-350 РҚ) қызметінің нәтижесінде пайда болған сұйық радиоактивті қалдықтарды (СРҚ) қайта өңдеу технологиясына арналған. Жұмыс ЖН-350 РҚ СРҚ қайта өңдеудің негізгі технологиялық кезеңдері тиімділігінің теоретикалық есептеулері мен тәжірибелік зерттеулеріне негізделген. Тәжірибелік зерттеулер Радиациялық қауіпсіздік және экология институты радиохимиялық зерттеулер зертханасының және Қазақстан Республикасы Ұлттық ядролық орталығы Ядролық физика институты инженерлік экология зертханасының базасында жүргізілді. Зерттеулер үшін ЖН-350 РҚ ыдыстарынан іріктеп алынған сұйық радиоактивті қалдықтардың үлгілері, сондай-ақ СРҚ химиялық құрамына ұқсас үлгі ерітінділері пайдаланылды. Жұмыс нәтижесінде ЖН-350 РҚ СРҚ қайта өңдеу технологиясының тиімділігі туралы қорытынды жасалды.

ON THE PROBLEM OF PROCESSING TECHNOLOGY EFFICIENCY FOR LIQUID RADIOACTIVE WASTE OF REACTOR PLANT BN-350

O.Yu. Korovina, S.N. Lukashenko, V.V. Kashirskiy

Institute of radiation safety and ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

This article focuses on technology for reprocessing of liquid radioactive waste (LRW), formed on the fast neutron reactor (RU BN-350), that is located in Aktau (Kazakhstan). The work is based on theoretical calculations and experimental studies of the efficiency of key technological steps of LRW processing from RU BN-350. Experimental studies were conducted on the basis of laboratory for radiochemical studies of the Institute of Radiation Safety and Ecology and Environmental Engineering Laboratory of the Institute of Nuclear Physics, National Nuclear Centre of Kazakhstan. Samples of liquid radioactive waste were studied, taken from the tanks at RU BN-350, as well as model solutions simulating the chemical composition of liquid radioactive waste. As a result conclusion was drawn about the effectiveness of technologies for reprocessing of liquid radioactive waste from BN-350.

УДК 577.4:577.391:504.53:539.16

ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ ЭКОСИСТЕМ ВОДОТОКОВ ГОРНОГО МАССИВА ДЕГЕЛЕН

Кабдыракова А.М., Кундузбаева А.Е., Лукашенко С.Н.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе приводятся данные исследования форм нахождения техногенных радионуклидов ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am в луговых почвах экосистем водотоков штолен № 176 и № 177 испытательной площадки «Дегелен» бывшего Семипалатинского испытательного полигона. Выявлено, что несмотря на пространственное ограничение исследуемых экосистем, существует значительная вариация содержаний форм нахождения радионуклидов в почве. Показано, что преобладающей формой нахождения радионуклидов ^{137}Cs и $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах исследуемых экосистем является прочносвязанная форма, радионуклидов ^{90}Sr и ^{241}Am - обменная и подвижная формы, соответственно. В результате проведенного корреляционного анализа оценено возможное влияние физико-химических свойств исследуемых почв на содержание форм нахождения радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr .

Цель работы состояла в исследовании распределения искусственных радионуклидов в луговых почвах пространственно ограниченных экосистем водотоков горного массива Дегелен между различными по физико - химической подвижности и биологической доступности фракциями на основе использования последовательного экстрагирования радионуклидов.

ВВЕДЕНИЕ

Определяющим фактором миграционной способности радионуклидов в системах почва - растение, почва - поверхностные и грунтовые воды и обуславливающим потенциальную опасность для человека являются формы нахождения радионуклидов в почвах.

Традиционный подход к определению характеристик мобильности и биодоступности радиоактивных загрязнителей в почве – это применение методов последовательной экстракции. В используемых методах используется последовательность постепенно более агрессивных химикатов и предполагается, что каждый из них выборочно будет выщелачивать часть загрязнителя, связанного в конкретных компонентах почвы. Избирательная способность и воспроизводимость процедур химической экстракции меняются в зависимости от типа экстрагента, характеристик исследуемого объекта и это часто следует учитывать, с тем, чтобы давать только качественную оценку биодоступности. Соотношение отдельных форм соединений искусственных радионуклидов необходимо изучать в единой системе, с помощью которой можно получить интегральную оценку о подвижности радионуклида в почве.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Объектами исследования были выбраны экосистемы водотоков штолен № 176 и № 177 горного массива Дегелен. Исследуемая экосистема водотока штольни № 176 представляет собой левостороннюю часть долины ручья Байтлес, отделенную от основного русла небольшим вытянутым по течению повышением с обнажениями скальных пород. Ширина русла водотока от штольни, в основном, не превы-

шает 1м. Территория экосистемы штольни № 177 является правосторонней частью притока долины ручья Узынбулак, отделенную от основного русла небольшим вытянутым по течению повышением и насыпью дороги. Ширина водотока штольни № 177, в основном, не превышает 1м.

В районе штольни № 176 пробы отбирались вдоль русла водотока по мере отдаленности от штольни. Было заложено 30 исследовательских площадок, с отбором пробы почвы на глубину 20 см, площадью не менее 100 см². Расстояние между максимально отдаленными точками составляло около 630 м. Ширина русла водотока, в основном, не превышала 1 м. На рисунке 1 представлена схема расположения точек отбора проб почв.

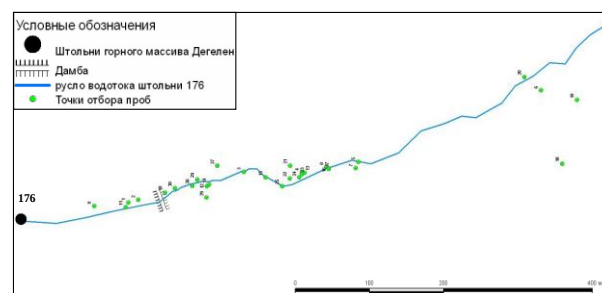


Рисунок 1. Схема расположения исследовательских площадок в районе штольни № 176

Схема отбора проб почв на территории экосистемы в районе штольни № 177 приведена на рисунке 2. Пробы отбирались также - вдоль русла водотока по мере отдаленности от портала штольни. Было заложено 36 исследовательских площадок с отбором пробы почвы на глубину 20 см, площадью не менее 100 см². Точки отбора проб почв были привязаны к местам точек отбора проб растений, отбираемых для изучения параметров накопления радионуклидов растениями.

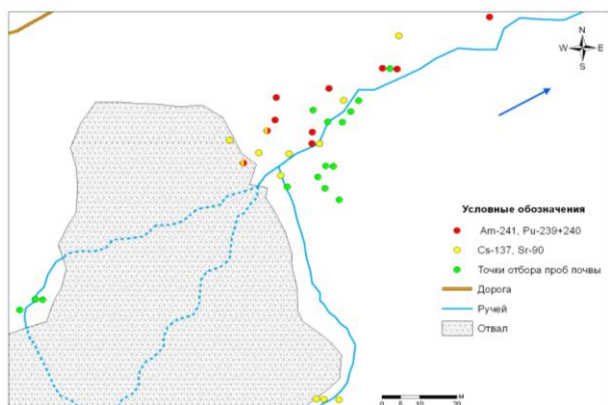


Рисунок 2. Схема расположения исследовательских площадок в районе штольни № 177

Изучение форм нахождения радионуклидов проводилось методом последовательного экстрагирования, общая схема которого приведена на рисунке 3.

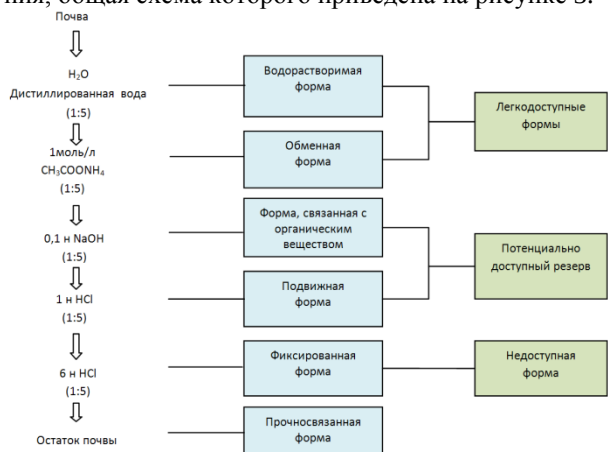


Рисунок 3. Схема изучения форм нахождения радионуклидов в почвах

Исходя из задач радиоэкологических исследований, изучение форм нахождения радионуклидов проводилось путем определения форм, влияющих на интенсивность и механизмы миграции радионуклидов. Для оценки прочности связи радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs в почвах экосистемы в районе штольни № 176 исследуемых экосистем определяли относительное содержание различных форм нахождения радионуклидов в почве методом последовательного экстрагирования водой (водорастворимая), раствором ацетата аммония (обменная), 1М HCl (подвижная) и 6М HCl [1,2,6,7] (неподвижная, фиксированная). Соотношение почвы и выщелачивающего раствора на всех этапах эксперимента поддерживалось равным 1:5. В исследованиях форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs в почвах экосистемы в районе штольни № 177 была использована модифицированная схема последовательного экстрагирования. Данная схема включала в себя выделение и определение относительного содержания дополнительных новых форм нахождения радионуклидов - форм, связанных

с органическим веществом почвы (выделяемых 0,1н раствором NaOH), в частности, в составе фракции I - гуминовые кислоты и фульвокислоты (ГК и ФК) и их соли, свободные или непрочно связанные с минеральной частью почвы, растворимой в 0,1н растворе NaOH (по Тюрину) [8]. Как известно, растворимые гумусовые вещества могут взаимодействовать с катионами тяжелых металлов, а также с искусственными радионуклидами, образуя гуматы, фульваты. Эти реакции подчиняются закономерностям образования и поведения простых или комплексных гетерополярных солей и оказывают влияние на миграцию, аккумуляцию и поступление в растения токсичных элементов. Более сокращенная модифицированная схема последовательного экстрагирования была применена и в изучении форм нахождения радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$. Данная схема предусматривала исключение водорастворимых форм (содержание которых, как показали результаты исследований почв штольни №176, ниже минимально детектируемой активности используемых методик) и фиксированных форм радионуклидов (выделяемых раствором 6М HCl), как правило, не влияющих на процессы миграции радионуклидов.

Для определения форм нахождения радионуклидов пробы почв предварительно высушивали и просеивали через сито с размером ячеек 1 мм. Из подготовленной пробы методом квартования отбирали аналитические навески массой 100 г.

Содержание ^{137}Cs и ^{241}Am в образцах почвы и вытяжках определяли инструментальным гамма-спектрометрическим методом. Удельную активность ^{90}Sr в образцах почвы определяли неразрушающим методом - прямым инструментальным измерением эффективной удельной активности ^{90}Sr на бета-спектрометре с программным обеспечением «Прогресс». Объемную активность ^{90}Sr и $^{239+240}\text{Pu}$ в образцах вытяжек - радиохимическим методом.

В почвенных образцах наряду с содержанием радионуклидов определяли физико - химические параметры:

- величину pH водной вытяжки;
- поглощенные основания, Ca, Mg (трилонометрически);
- гумус (углерод) по методу Тюрина в модификации Никитина;
- содержание водорастворимых веществ (HCO_3^- , Cl^- , SO_4^{2-} , Ca, Mg, K, Na);
- гранулометрический анализ по методу Качинского;

Определение этих показателей проводилось по общепринятым методам [3-5,9].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Характеристика почв исследуемой экосистемы. Из общего описания почвенного покрова и полученных данных, можно отметить, что почвы 2-х участков исследования относятся к почвам лугового ряда.

Почвы маломощные. Мощность почвенной толщи в русле не превышает 40 - 60 см, в береговой зоне 20 - 40 см. Они достаточно хорошо гумусированы, особенно по центру русла, хорошо промыты от легко-растворимых солей и карбонатов. pH водной суспензии редко нейтральная, чаще слабощелочная или щелочная. В почвенно - поглощающем комплексе преобладает катион Са. По механическому составу на участке детального обследования экосистемы водотока штольни № 176 почвы, в основном, легкосуглинистые и супесчаные, реже среднесуглинистые, тогда как на участке водотока штольни № 177 среди рыхлых отложений преобладают средние и тяжелые суглинки. Это обусловлено уменьшением уклонов, и, как следствие, снижением дренированности территории. Все исследуемые луговые почвы долин отличаются включением по всему почвенному профилю большого обломочного материала: хряща, крупного песка и крупной пыли. Необходимо отметить, что в луговых почвах экосистемы водотока штольни № 176 содержание илстых частиц находится в пределах 0,1-11%, а в почвах экосистемы штольни № 177, подвергающихся меньшей дренированности, содержание ила достигает 19-31%. Таким образом, уменьшение уклона местности, и, соответственно, скорости потока, приводит к изменению естественной дренированности территории, что отражается в почвенных показателях: увеличивается количество тонких частиц, отмечается накопление легко-растворимых солей в поверхностных горизонтах, увеличивается количество тонкого гумуса.

В таблице 1 приведены результаты определений физико-химических параметров исследуемых почв.

Соотношение форм нахождения радионуклидов. В пробах почв, отобранных на территории экосистемы водотока штольни № 176, определение соотношений форм нахождения проводилось для двух радионуклидов - ^{90}Sr и ^{137}Cs , определяющих основное радиоактивное загрязнение исследуемой территории. Из 30 проанализированных проб почвы для ^{90}Sr полные количественные данные получены для 14 проб, для ^{137}Cs - для 10 проб.

Результаты исследования форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs в виде их соотношения представлены в таблице 2. Концентрации радионуклидов выражены в процентах от суммарного содержания всех исследованных форм.

Из результатов исследования видно, что основное содержание ^{137}Cs в почвах экосистемы в районе штольни № 176 представлено в формах, характеризующихся наименьшей биологической доступностью - фиксированной (57,3%) и прочносвязанной (19,4%). Водорастворимая форма радионуклида составляет в среднем 13,1%, подвижная - 10,2% от суммарного содержания всех форм.

Для ^{90}Sr характерна иная картина распределения. Основное содержание данного радионуклида сосредоточено в легкодоступных формах (водорастворимая + обменная - 54,5%, подвижная - 35,2%, в среднем). Значительно меньшими по содержанию радионуклида являются фиксированная и прочносвязанная формы нахождения, в среднем, 6% и 4%, соответственно.

Таблица 1. Физико- химические характеристики почв исследуемых экосистем

Почвенная характеристика	шт. 176		шт. 177	
	интервал	среднее	интервал	среднее
Концентрация органического вещества, С, %	7 - 23	14	11 - 21	16
pH водной суспензии (актуальная кислотность)	6,8 - 7,9	7,5	7,1 - 7,9	7,5
Сумма солей, %	0,02 - 0,3	0,045	0,05 - 0,6	0,2
Сумма обменных оснований, мг-экв/100 г	17 - 40	27	28 - 52	41
Гранулометрический состав: содержание физической глины (частиц почвы размером <0.01 мм), %	15 - 37	23	32 - 59	42
в том числе:				
илистых частиц (<0.001 мм), %	0,1 - 11	5	19 - 31	24
мелкой пыли (0.001-0.005 мм), %	0,2 - 12,3	9	3,4 - 25	9,4
средней пыли (0.005-0.01 мм), %	3,3 - 14	9	3,3 - 15,4	9,4
содержание частиц крупной пыли (0.01-0.05 мм), %	12,6 - 41	29	3,2 - 48,4	35
Удельная активность ^{137}Cs в почве, Бк/кг	26 - 450 000	27 400	16 - 8700	1900
Удельная активность ^{90}Sr в почве, Бк/кг	610 - 33 000	11 900	1800 - 117100	72000
Удельная активность ^{241}Am в почве, Бк/кг	-	-	200 - 680	400
Удельная активность $^{239+240}\text{Pu}$ в почве, Бк/кг	-	-	2900 - 12200	6300

Таблица 2. Диапазон значений содержания форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs в почвах экосистемы в районе штольни № 176, % от суммарного содержания всех форм

Формы нахождения	^{137}Cs , % (n=10)		^{90}Sr , % (n=14)	
	диапазон	среднее	диапазон	среднее
водорастворимая + обменная	0,5 - 35,6	13,1	32,7 - 65,1	54,5
подвижная	1,4 - 24,4	10,2	14,7 - 54,5	35,2
фиксированная	15,1 - 77,4	57,3	0,7 - 17,1	6,4
прочносвязанная	0,1 - 79,4	19,4	1,73 - 7,6	3,9

n = число количественных значений

Изучение форм нахождения радионуклидов в почвах экосистемы штольни № 177 проводилось для четырех радионуклидов - ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$. Из 36 отобранных проб почвы для изучения форм нахождения в почве техногенных радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs было исследовано 12 проб, ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ - 10 проб почв. При этом полные количественные данные относительного содержания форм нахождения радионуклида ^{137}Cs получены для 3 проб, ^{241}Am - для 6 проб, для $^{239+240}\text{Pu}$ - всего для 3 проб в связи с малыми выходами $^{239+240}\text{Pu}$ в ходе радиохимического выделения. Как сказано выше, в почвах экосистемы в районе штольни № 177 были определены обменная, органическая, подвижная, фиксированная и прочно-связанная формы радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs . Для радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ была использована сокращенная схема выделения обменной, органической, подвижной и прочносвязанных форм.

В таблице 3 приведены оценочные данные соотношений форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах штольни № 177.

Для ^{137}Cs наблюдается характерная для данного радионуклида картина. Из таблицы видно, что содержание легкодоступного цезия, в среднем, не превышает 1%. Основное содержание цезия в прочно-связанной форме (84,1%), менее высокое значение характеризует фиксированную форму (13,4%). В незначительных количествах ^{137}Cs присутствует в подвижной форме и обменной форме, а также в форме, связанной с ГК и ФК (1,1%, 0,8% и 0,4%, соответственно). Для ^{90}Sr характерно преобладание легкодоступных форм (водорастворимая + обменная – 53%, подвижная – 33%). Меньшими значениями содержания радионуклида характеризуются фиксированная форма – 8% и прочносвязанная форма – 4%, в среднем. Содержание органических форм радионуклида ^{90}Sr незначительно - 2% от суммарного содержания всех форм. Для полного изучения вопроса о распределении радионуклидов в органическом веществе необходимо определение группового и фракционного состава гумуса. Результаты, полученные ранее, дают возможность сделать предварительную оценку групповому и фракционному составу гумуса исследуемых почв. Содержание гуминовых кислот несколько превышает фульвокислоты. Преобладающая их часть связана с подвижным кальцием, менее значительная относится к свободным гуминовым кислотам и только небольшое количество прочно связано с минеральной частью почвы.

По результатам исследования, радионуклид $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах штольни № 177 в значительных количествах, 86% от суммы всех форм, содержится в прочносвязанной форме. Практически одинаково невелико содержание радионуклида в подвижной форме и органической форме, связанной с ГК и ФК. Незначительная часть $^{239+240}\text{Pu}$, в среднем, 2% от суммы всех форм, находится в обменной форме.

Закономерности миграции $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am подобны, однако, в отличие от $^{239+240}\text{Pu}$ ^{241}Am имеет достаточно хорошую растворимость и, следовательно, имеет большую подвижность в окружающей среде (по сравнению с плутонием). Предварительные оценочные данные соотношений форм нахождения радионуклида ^{241}Am позволяют сказать о том, что данный радионуклид в почвах представлен, в основном, в подвижной форме.

Сравнительный анализ показывает, что в луговых почвах экосистемы штольнего водотока соотношение форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs существенно отличаются. ^{137}Cs в почве, в основном, находится в прочносвязанном состоянии. В отличие от ^{137}Cs , основное содержание ^{90}Sr приходится на долю обменной формы, по-видимому, обуславливающей большую биологическую доступность ^{90}Sr .

Полученные данные показывают, что несмотря на то, что исследования проводились в пределах одной пространственно ограниченной экосистемы, одного типа почвы и других, близких к идентичным, условиях существует значительная вариация в содержаниях форм нахождения данных радионуклидов.

Для более наглядного представления результаты показаны в виде гистограммы эмпирических распределений частот появления значений содержания форм нахождения радионуклидов. На рисунке 4, представлены гистограммы распределения результатов по частоте встречаемости значений содержания форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs в исследуемых почвах, как наиболее изученных.

Наиболее широкий диапазон варьирования характерен для содержания фиксированных форм ^{90}Sr , который достигает двух порядков. Диапазон варьирования водорастворимых форм лежит в пределах одного порядка.

Для цезия характерен более значительный размах варьирования содержания форм, по-сравнению со ^{90}Sr . Наибольшие диапазоны варьирования имеют прочносвязанные, обменные и подвижные формы, достигая двух порядков.

Таблица 3. Диапазон значений содержания форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах экосистемы в районе штольни № 177, % от суммарного содержания всех форм

Формы нахождения	^{137}Cs , % (n=3)		^{90}Sr , % (n=12)		^{241}Am , % (n=6)		$^{239+240}\text{Pu}$, % (n=3)	
	диапазон	среднее	диапазон	среднее	диапазон	среднее	диапазон	среднее
водорастворимая + обменная	0,1 - 1,9	0,8	43,0 - 69,5	53,0	2,4 - 5,6	3,7	0,6 - 3,8	1,6
органическая	0,1 - 0,9	0,4	1,4 - 2,4	2,0	0,8 - 4,7	2,2	2,1 - 12,5	6,3
подвижная	0,6 - 1,6	1,1	24,1 - 40,0	33,0	62,8 - 83,3	77,5	0,1 - 14,9	6,2
фиксированная	11,8 - 14,9	13,4	4,4 - 10,9	8,0	-	-	-	-
прочносвязанная	80,8 - 86,2	84,1	2,2 - 5,7	4,0	10,4 - 30,7	16,6	72,1 - 92,4	85,9

n = число количественных значений

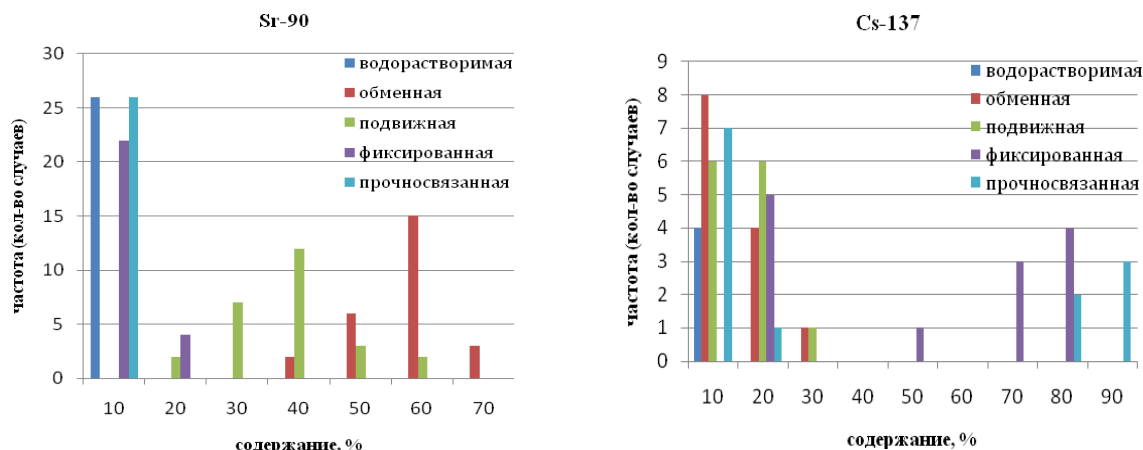


Рисунок 4. Гистограмма распределения частот встречаемости значений содержания форм нахождения ^{90}Sr и ^{137}Cs в почвах экосистем в районе штолен № 176 и № 177

Для оценки вариативности содержания форм нахождения радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr и подкрепления показанных эмпирических распределений целесообразно представить статистические числовые показатели результатов исследования. Наиболее распространенными и показательными из них являются среднее значение, среднеквадратическое отклонение и коэффициент вариации (таблица 4).

Как видно из таблицы, существует значительная вариабельность содержаний в почвах штольни № 176 форм находений обоих радионуклидов, особенно это выражено в содержаниях водорастворимой формы ^{137}Cs ($K_{\text{вар}} = 140\%$), и прочносвязанной формы ($K_{\text{вар}} = 156\%$) и в значительной степени фиксированной ($K_{\text{вар}}=71\%$) формы ^{90}Sr . Почвы штольни № 177 характеризуются значительной вариабельностью содержаний водорастворимых форм ^{90}Sr ($K_{\text{вар}} = 76\%$).

Оценка возможного влияния физико-химических свойств луговых почв на формы нахождения радионуклидов в почве. Биологическая подвижность радионуклидов (способность мигрировать по пищевым цепочкам) зависит, с одной стороны, от их физико-химических свойств, а с другой стороны, от свойств самой почвы, среди которых решающее значение играет ее тип, минеральный состав, кислотность, содержание органических веществ, увлажненность, длительность ее использования в агроэкосистемах и т. д.

Оценка влияния физико-химических свойств почв на относительное содержание форм нахождения радионуклидов из-за недостатка количественных данных по $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am рассмотрена только для ^{137}Cs и ^{90}Sr в почвах двух исследуемых экосистем штолен № 176 и №177.

В таблице 5 представлены коэффициенты корреляции между некоторыми почвенными характеристиками и содержанием форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr и ^{137}Cs в почвах штолен №176 и №177.

Положительная корреляционная связь наблюдается между содержанием прочносвязанных форм ^{90}Sr и содержанием гумуса в почвах двух исследуемых экосистем, коэффициент корреляции равен 0,48. Также,

наблюдается тенденция положительного влияния содержания водорастворимых солей на содержание водорастворимых форм ^{90}Sr ($K_{\text{корр}} = 0,42$). Выявлена тенденция обратного влияния содержания поглощенных оснований на содержание обменных форм ^{90}Sr . С увеличением в почвах содержания обменных оснований, содержание обменных форм радионуклида ^{90}Sr уменьшается ($K_{\text{корр}} = -0,58$).

Результаты исследований позволяют оценить влияние физико-химических свойств почв на поведение ^{137}Cs . Наиболее значимые корреляционные связи наблюдаются между содержанием прочносвязанных форм нахождения радионуклида и содержанием в почве водорастворимых солей и физической глины.

Выявление корреляционных связей между физико-химическими свойствами и соотношением форм нахождения радионуклида ^{90}Sr возможно при обобщении результатов для двух штолен. На рисунке 5 изображены графики зависимости содержания форм нахождения радионуклидов от физико-химических свойств почв для двух штолен.

Из данных анализа видно, что на содержание форм нахождения радионуклида ^{90}Sr определенное влияние оказывает гранулометрический состав. В частности, содержание физической глины и илистой фракции оказывает прямое влияние на содержание фиксированных форм радионуклида. Гранулометрический состав почв в значительной степени определяет их поглощательную способность. Сорбционная способность почв находится в прямо пропорциональной зависимости от степени дисперсности почвенных частиц, поскольку отдельные фракции почв различаются не только размером частиц, но и физическими, химическими свойствами, минералогическим составом. С уменьшением размеров частиц снижается содержание оксида кремния, возрастает количество содержания гумуса и обменных катионов кальция, магния и калия. С уменьшением размера фракций почвы прочность закрепления ими радионуклидов повышается. Наиболее прочно закрепляются радионуклиды илистой фракцией.

ФОРМЫ НАХОЖДЕНИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В ПОЧВАХ ЭКОСИСТЕМ ВОДОТОКОВ ГОРНОГО МАССИВА ДЕГЕЛЕН

Таблица 4. Обобщенные вариационно - статистические показатели содержания форм нахождения радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr в луговых почвах экосистем водотоков штолен №176 и №177

Форма нахождения радионуклида	шт. 176						шт.177		
	^{137}Cs			^{90}Sr			^{90}Sr		
	$A_{\text{ср}}$ %	σ	$K_{\text{вар}}$ %	$A_{\text{ср}}$ %	σ	$K_{\text{вар}}$ %	$A_{\text{ср}}$ %	σ	$K_{\text{вар}}$ %
водорастворимая	2,14	2,9	140	1,1	0,5	46	1,4	1,0	76
обменная	13,1	8,9	69	53,4	8,9	17	51,6	6,6	13
органическая	-	-	-	-	-	-	1,8	0,4	23
подвижная	10,2	6,2	60	35,2	11,5	33	33,1	4,7	14
фиксированная	57,4	23,8	42	6,4	4,7	73	8,2	1,6	20
прочносвязанная	19,3	30,2	156	3,9	1,8	47	3,9	1,0	26

$A_{\text{ср}}$ – среднее арифметическое, σ – среднеквадратическое отклонение, $K_{\text{вар}}$ – коэффициент вариации.

Таблица 5. Корреляционные связи относительного содержания форм нахождения радионуклидов и физико-химических свойств почв

Формы нахождения	Гумус, %		рН		Сумма солей, мг-экв на 100 г почвы		Сумма обменных оснований, мг-экв на 100 г почвы		Физическая глина, %	
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs	^{90}Sr	^{137}Cs
водорастворимая	0,39	*	0,22	*	0,42	*	0,25	*	-0,004	*
обменная	-0,36	-0,19	-0,36	0,49	-0,14	-0,45	-0,58	-0,07	-0,03	-0,36
органическая	0,06	-	-0,27	-	0,12	-	-0,31	-	0,29	-
подвижная	0,14	-0,15	0,3	0,36	-0,03	-0,57	0,24	-0,18	-0,2	-0,31
фиксированная	0,12	-0,30	0,02	0,44	0,07	-0,62	0,34	-0,52	0,28	-0,67
прочносвязанная	0,48	0,28	0,02	-0,50	0,04	0,65	0,27	0,43	0,08	0,63

*- количественных данных нет

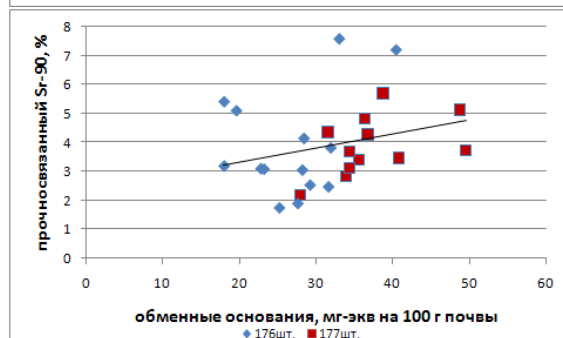
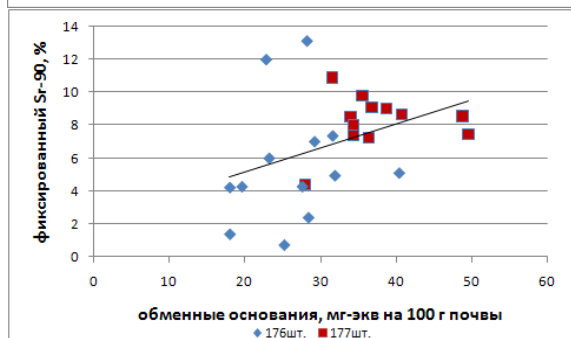
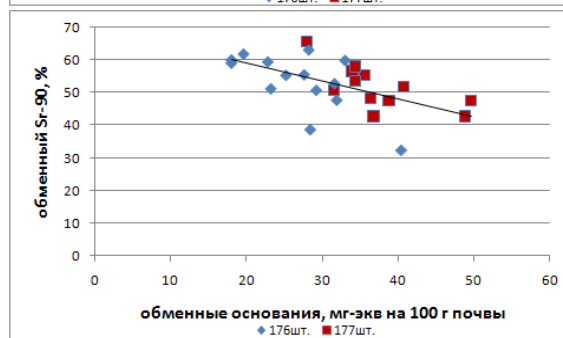
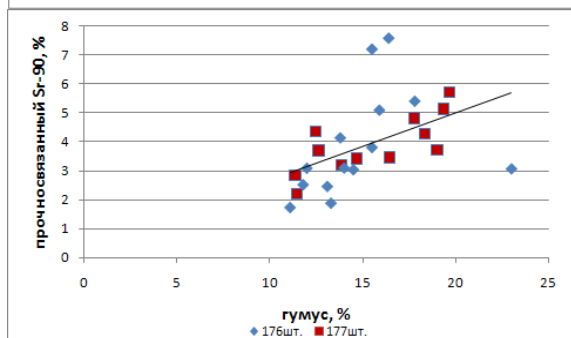
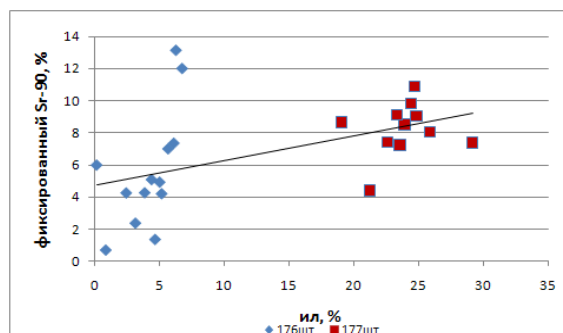
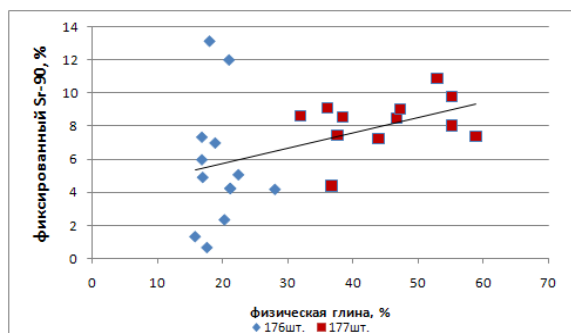


Рисунок 5. Зависимость содержания форм нахождения радионуклида ^{90}Sr от физико- химических свойств почв

Результаты исследований показывают, что содержание гумуса также оказывает прямое влияние на содержание прочносвязанных форм. Известно, что на поведение ^{90}Sr в почве оказывает значительное влияние органическое вещество. Распределение и подвижность ^{90}Sr в значительной степени определяются количеством и качественным составом гумуса. Предпочтительнее ^{90}Sr связывается с фульвокислотами. Стронций присутствует в почвах, в основном, в форме сложных комплексов, в состав которых входят кальций, железо и алюминий. В зависимости от того в растворимом или не растворимом состоянии они находятся в почве, возрастает или уменьшается доля стронция в подвижном состоянии.

Вопрос о влиянии обменных оснований на соотношение форм нахождения радионуклидов является малоизученным. Результаты наших исследований показывают, что содержание обменных оснований в почве оказывает обратное влияние на подвижность радионуклида ^{90}Sr . Так, увеличение содержания обменных оснований приводит к увеличению содержания обменных форм радионуклида и к уменьшению его недоступных форм - фиксированной и прочносвязанной.

Возможно, что, корреляционные связи между содержаниями форм радионуклидов и различных почвенных частиц являются в своем роде опосредованным показателем, и, вероятнее всего, причина кроется в отличии минералогического, химического состава, емкостей поглощения, сорбционной способности и других характеристик разных почвенных частиц. Определение количественных параметров влияния отдельных свойств почв на содержание форм нахождения радионуклидов является сложной задачей, так как большинство физико-химических показателей тесно связано между собой, и степень воздействия каждого отдельного свойства зависит от влияния всего комплекса.

Огромное влияние на подвижность радионуклидов оказывает кислотность почв, однако в исследованных почвах данная закономерность не была выявлена вследствие недостаточности диапазона варьирования данного фактора в пределах рассматриваемых биогеоценозов.

Оценка возможного влияния некоторых макроэлементов и стабильных изотопов на формы нахождения радионуклидов в почве. Большое влияние на доступность растениям радионуклидов может оказывать наличие в почвах обменных катионов - элементов - носителей и стабильных изотопов.

Являясь изотопами химических элементов, радионуклиды характеризуются теми же химическими свойствами, что и стабильные изотопы этих элементов, а также химическими свойствами элементов - аналогов. Однако тождественность поведения радионуклидов и их стабильных аналогов может наблюдаться только в случае равновесного распределения физико-химических форм привнесенных форм радионуклидов и природных форм нахождения их стабильных аналогов в почве, т.е. при достижении полноты изотопного обмена в фазах и компонентах почвы. Поэтому время достижения равновесного распределения зависит не только от физико-химических свойств почвы, реакции и состава почвенного раствора, количества и состава почвенных коллоидов, влагосодержания и т.п., но в первую очередь и от исходного физико-химического состояния радионуклидов и скорости его трансформации в конкретных ландшафтно-геохимических условиях.

Для сравнения поведения в почвах радионуклидов с поведением макроэлементов и стабильных изотопов в таблице 6 представлены данные содержания форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , макроэлементов и стабильных изотопов, в % от суммарного содержания всех форм.

Таблица 6. Соотношение форм нахождения радионуклидов ^{90}Sr , ^{137}Cs , макроэлементов и стабильных изотопов в почвах экосистемы в районе штольни № 176, % от суммарного содержания всех форм

Формы нахождения	Щелочные металлы				Щелочно - земельные металлы				
	^{137}Cs , %	Cs, %	K, %	Na, %	^{90}Sr , %	Sr, %	Ca, %	Mg, %	Ba, %
водорастворимая	2,1	*	0,3	0,5	1,1	1,2	1,2	0,5	0,04
обменная	13,1	0,6	2,4	0,4	53,4	29,4	32,8	6,4	2,1
подвижная	10,2	0,4	0,7	0,1	35,2	15,9	10,6	4,9	5,0
фиксированная	57,4	16,9	4,4	0,2	6,4	9,4	8,1	40,2	2,8
прочносвязанная	19,3	82,0	92,3	98,9	3,9	43,9	47,2	48,0	90,0

*- количественных данных нет

Строгой тождественности поведения элементов, как следовало ожидать, из приведенных данных не выявлено, однако, определенная тенденция просматривается для обоих радионуклидов. Поведение радионуклида ^{137}Cs , в определенной степени, схоже с поведением его химического аналога K и стабильного изотопа Cs. Закономерно, что основная доля элементов Na, K, Cs представлена в прочносвязанной форме, как правило, в составе кристаллической решетки пер-

вичных и вторичных минералов. Основное содержание радионуклида ^{137}Cs наблюдается в составе фиксированных форм, также недоступных растениям. Значительное отличие ^{137}Cs в сравнительно большем содержании его легкодоступных форм.

Известно, что закрепление и распределение радионуклида стронция в компонентах почв, в основном, определяется закономерностями поведения изотопного носителя - стабильного стронция, а также хи-

мического аналога - стабильного кальция. Как видно из таблицы, поведение стабильного Sr практически тождественно поведению Ca. Наибольшее содержание их в почве представлено в прочносвязанной форме, в среднем 44 - 47% от общего содержания, 31 - 34% составляет легкодоступные формы (водорастворимые + обменные), менее значительны по содержанию фиксированные (8,1 - 9,4%) и подвижные формы (10,6 - 15,9%). Радионуклид ^{90}Sr отличается большей растворимостью, и, соответственно, обладает большей биологической доступностью по сравнению с его химическими аналогами. Доля прочносвязанных форм радионуклида ^{90}Sr является, в точности наоборот, минимальной, всего 4% от общего содержания всех форм. Наиболее значительными формами нахождения радионуклида ^{90}Sr являются легкодоступные (55%) и подвижные (35%), менее значительно содержание фиксированных форм (6%).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Обнаружено, что соотношение форм нахождения ^{137}Cs и ^{90}Sr в луговых почвах экосистем водотоков штолен существенно различаются. Радионуклид ^{137}Cs в почве, в основном, находится в прочносвязанной и фиксированной формах. Основное содержание ^{90}Sr , приходится на долю обменной формы, по-видимому, обуславливающей большую биологическую доступность ^{90}Sr .

Предварительные результаты выявили различие поведения трансурановых радионуклидов ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$ в почвах. Основное содержание радионук-

лида ^{241}Am сосредоточено в подвижной форме, $^{239+240}\text{Pu}$ - в прочносвязанной, недоступной растениям, форме.

В пределах одной пространственно ограниченной экосистемы, единого типа почвы и при идентичности прочих условий содержание форм нахождения техногенных радионуклидов в луговой почве варьирует в значительном диапазоне: для ^{137}Cs - от 5 до 790 раз, ^{90}Sr , - от 1,5 до 24 раз.

В результате проведенного корреляционного анализа удалось установить наличие тенденции слабого влияния некоторых физико - химических свойств почв на относительное содержание форм нахождения техногенных радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr в исследуемых луговых почвах.

Оценена аналогия поведения в почвах радионуклидов ^{137}Cs и ^{90}Sr и их химических аналогов и стабильных изотопов.

В целом, проведены детальные работы по изучению форм нахождения различных радионуклидов в почвах двух экосистем штольневых водотоков горного массива Дегелен с практически идентичными физико - химическими почвенными характеристиками и с различными типами радиоактивного загрязнения. Заключение, основанные на полученных результатах могут быть применены для оценки и прогноза форм нахождения изученных радионуклидов в луговых почвах горного массива Дегелен в целом, с учетом вариативности почвенных характеристик и характера радиоактивного загрязнения.

ЛИТЕРАТУРА

1. Агеев, В.Ю. Система радиэкологических контрмер в агрофере Беларуси / В.Ю.Агеев. - Гомель: РНИУП «Институт радиологии», 2001. - 250с.
2. Воздействие радиоактивного загрязнения на наземные экосистемы в зоне аварии на Чернобыльской АЭС (1986-1996): тр. Коми научного центра УрО Российской АН, № 145. - Сыктывкар, 1996. - 115с.
3. ГОСТ 26213-91. Почвы. Методы определения органического вещества. - Взамен ГОСТ 26213-84; введен 1991-12-29. - М.: Изд-во стандартов, 1992. - 6с.
4. ГОСТ 26423-85. - ГОСТ 26428-85. Почвы. Методы определения катионно - анионного состава водной вытяжки. - Введ. 1985-02-18. - М.: Изд-во стандартов, 1985. - 10с.
5. ГОСТ 12536-79. Грунты. Методы лабораторного определения гранулометрического (зернового) состава и микроагрегатного состава. - Взамен ГОСТ 12536-67; введен 1980-07-01. - М.: Изд-во стандартов, 1979. - 13с.
6. Лысенко, Н.И. Ведение животноводства в условиях радиоактивного загрязнения среды / Н.И. Лысенко, А.Д. Пастернак, Л.В. Рогожина, А.Г. Павлов. - Санкт - Петербург, 2005. - 240с.
7. Молчанова, И.В. Эколого - геохимические аспекты миграции радионуклидов в почвенно - растительном покрове / И.В.Молчанова, Е.Н.Караваева. - Екатеринбург: УрО РАН, 2001. - 161с.
8. Орлов, Д.С. Практикум по биохимии гумуса / Д.С. Орлов, Л.А.Гришина, Н.Л. Ерошинева. - М.: Изд-во Московского Университета, 1969. - 160с.
9. Сборник методических указаний по лабораторным исследованиям почв и растительности Республики Казахстан. - Алматы, 1998. - 226с.

**ДЕГЕЛЕН ТАУЛЫ МАССИВІНЕН АҚҚАН СУ АҒЫНДАРЫНЫҢ
ЭКОЖҮЙЕ ТОПЫРАҚТАРЫНДА РАДИОНУКЛИДТЕРДІ ТАБУ ФОРМАСЫ**

Қабдырақова А.М., Құндызбаева А.Е., Лукашенко С.Н.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Курчатов, Қазақстан

Бұл мақалада бұрынғы Семей сынақ полигонының «Дегелен» сынақ алаңындағы № 176 және № 177 штольняларынан аққан су ағындары экожүйесіндегі жайылымдық топырақтан ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ және ^{241}Am техногенді радионуклидтерін табу формасына жүргізілген зерттеулердің деректері келтірілген. Зерттеліп жатқан экожүйелердің кеңістіктегі шектелуіне қарамастан, топырақтағы радионуклидтерді табу формасында қомақты түрде өзгеріс бар екені анықталды. Зерттеліп жатқан экожүйелердің топырағында ^{137}Cs және $^{239+240}\text{Pu}$ радионуклидтерін табу формасында тығыз байланысқан форма басым болып, ^{90}Sr және ^{241}Am радионуклидтерін табуда тиісінше ауыспалы және қозғалмалы форма басым форма болып табылады. Өзара байланыстылық талдама жүргізу нәтижесінде ^{137}Cs және ^{90}Sr радионуклидтерін табу формасының құрамына зерттелетін топырақтың физика-химиялық қасиетінің болжамды әсер етуі бағаланды.

**RADIONUCLIDES SPECIES OCCURRENCE IN SOILS
OF WATERCOURSE ECOSYSTEMS ON DEGELEN MOUNTAIN MASSIF**

A.M. Kabdyrakova, A.E. Kunduzbaeva, S.N. Lukashenko

Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The work presents data of studying the ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am radionuclides species occurrence in meadow soils of watercourse ecosystems at tunnels № 176 and № 177 of “Degelen” site at former Semipalatinsk test site. It was revealed that despite the spatial delimitation there is considerable variation for radionuclide occurrence in soil. It was shown that the dominant form of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ radionuclides occurrence in soils of studied ecosystems was well bound form, ^{90}Sr and ^{241}Am – exchange and mobile forms, accordingly. As a result of correlation analysis we have assessed the possible influence of physical and chemical properties of studied soils on content of ^{137}Cs and ^{90}Sr radionuclides occurrence.

УДК 504.4.054:577.4: 546.11.02.3

МЕХАНИЗМЫ ФОРМИРОВАНИЯ ЗАГРЯЗНЕННОСТИ ТРИТИЕМ ВОЗДУШНОГО БАСЕЙНА В ПРЕДЕЛАХ ГОРНОГО МАССИВА «ДЕГЕЛЕН»

Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Вопрос тритиевого загрязнения занимает особое место в радиоактивном загрязнении природных сред. В данной работе проведена оценка уровня и характера распределения трития в атмосферном воздухе экосистем штолен с водопроявлением на примере штолен № 176 и № 177, расположенных на площадке "Дегелен". Представлен общий характер распределения трития в атмосфере относительно поверхностного водотока, изучены основные механизмы распределения трития в атмосферном воздухе изучаемых экосистем. Проведен аналитический расчет концентрации трития в атмосфере по концентрации трития в воде. Представлен общий характер распределения трития в воздушной среде на территории площадки "Дегелен".

ВВЕДЕНИЕ

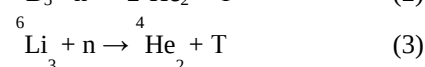
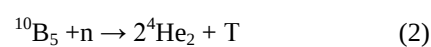
Принимая во внимание специфичный характер тритиевого загрязнения территории площадки "Дегелен", расположенной на Семипалатинском испытательном полигоне (СИП), требуется особенный подход к изучению уровней и характера распределения трития в объектах окружающей среды. Немаловажную роль при рассмотрении данного вопроса играет характер формирования тритиевого загрязнения атмосферы.

Тритий в природе. В природе тритий образуется в верхних слоях атмосферы с участием космического излучения со скоростью 1200 атомов в секунду в расчете на 1 м² земной поверхности. Источником синтеза трития в атмосфере являются ядерные реакции под действием космического излучения: быстрые космические нейтроны расщепляют азот на два фрагмента – ¹²C и тритий, а протоны высоких энергий и мезоны способны порождать тритий при взаимодействии с ядрами любых элементов, составляющих атмосферу [1]:



Образующиеся таким образом атомы трития в результате реакций окисления и изотопного обмена переходят в молекулы воды, затем тритий в составе дождевой воды выпадает на поверхность Земли [2]. В 1 л воды в среднем содержится $1,1 \cdot 10^{-1}$ Бк трития, в 1 л воздуха – $5,7 \cdot 10^{-4}$ Бк [3].

Искусственный тритий. Начиная с 1945 г. (начало испытаний ядерного оружия), положение резко изменилось, и в дождевой воде содержание трития увеличилось в тысячи раз. При этом общее количество трития, поступившее в биосферу в результате испытаний, составило сотни килограммов. Образование искусственного трития, в основном, обусловлено испытаниями ядерного оружия и деятельностью, связанной с ядерным топливным циклом. При проведении взрывов реакция синтеза дает $\sim 7 \cdot 10^{14}$ Бк/кт, реакция деления $\sim 4 \cdot 10^{10}$ Бк/кт. Подземные взрывы увеличивают эти цифры за счет ядерных реакций на боре и литии, находящихся в скальных породах [4]:



Наиболее вероятно, искусственный тритий, образованный в результате проведения взрывов, может находиться в форме трех основных соединений – тритированной воды (НТО), тритированного водорода (НТ) и тритированного метана. Тритий может присутствовать во всех природных средах – в атмосферном воздухе, воде, почве, растительности.

Площадка "Дегелен". За период проведения испытаний на территории горного массива Дегелен было проведено 209 подземных ядерных взрывов в 180 штольнях, в результате чего произошло образование значительного количества трития. Мощность ядерных взрывов, испытанных в штольнях, составила от 0,001 до 125 кт. По данным ранее проведенных исследований, значения концентраций трития в поверхностных и подземных водах горного массива Дегелен составляют порядка $n \cdot 10^5$ Бк/кг [5].

Так как в геологическом отношении горный массив Дегелен представляет собой крупный гранитный батолит – гранитные породы распространены здесь на 75–80 %, одним из путей образования трития в полостях штолен на территории площадки "Дегелен", возможно, являются реакции, упомянутые выше (2, 3), имевшие место в момент проведения подземных взрывов. Основные элементы, входящие в состав гранитов, это Sn, W, Mo, Li, Be, B, Rb, Bi, Ta, Au, содержание Li в скальных гранитовых породах колеблется от 1 до 30 мг/кг, В – значительное меньшее количество, порядка 0,001 мг/кг [6, 7]. Тритий, образованный по реакциям на литии и боре, безусловно, внес свой вклад в общее количество образовавшегося трития на территории горного массива Дегелен, но оценить этот вклад достаточно сложно. Исходя из того, что концентрация трития в штольневых ручьях остается практически постоянной во времени величиной, можно предположить, что внутри котловой полости штольни происходит процесс постепенного вымывания три-

тия (Т), нарабатанного во время проведения взрывов, из кристаллической структуры оплавленной поверхности внутренних стенок.

Вероятно также, что во время проведения ядерных взрывов внутри полости штолен происходило образование и газообразного трития, в виде тритированного водорода (НТ). Газообразный тритий, попадающий в атмосферу, менее токсичен и подвижен, чем НТО или T_2O и через довольно короткий период времени переходит в окись трития (НТО), активно замещая стабильный водород в молекулах воды в водяных парах [8].

Высокая мобильность трития в окружающей среде и данные по содержанию трития в водных объектах площадки "Дегелен" послужили основанием к проведению подробных исследований по изучению уровня тритиевого загрязнения воздушной среды горного массива Дегелен, а также механизмов его формирования.

1. МЕТОДЫ И ОБЪЕКТЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

Основная цель – проведение оценки уровня и характера распределения трития в атмосферном воздухе, а также механизмов формирования тритиевого загрязнения в пределах горного массива Дегелен.

1.1. Краткая характеристика объектов исследования

Детальные исследования проведены на примере экосистем водотоков штолен № 176 и № 177, расположенных в притоке ручья Байтлес и притоке ручья Узынбулак. Основная характеристика выбранных участков исследования – наличие штольни с водопоявлением в виде открытого водотока, выходящего на поверхность у портала штольни. Протяженность русла составляет порядка 400–600 м, с постепенным пересыханием по мере удаления от портала. Среднегодовая удельная активность трития в воде

составляет 350 и 550 кБк/кг на штольнях № 176 и № 177, соответственно [9].

На рисунке показано месторасположение штолен, на которых проводились указанные исследования (рисунок 1, а), а также общий вид участков исследования (рисунок 1, б).

1.2. Отбор и подготовка проб

Отбор проб водяных паров воздуха. Исследование уровня концентрации трития в атмосферном воздухе проводилось посредством отбора проб водяных паров методом криогенного вымораживания и проведением жидкостинтилляционного бета-спектрометрического анализа отобранных проб.

Отбор проб водяных паров атмосферного воздуха проводился открытым способом. На выбранном участке исследования устанавливалась криогенная установка, и производилось вымораживание на высоте 50 см от поверхности земли.

Отбор проб водяных паров почвенного и штольневового воздуха проводился с помощью емкости, позволяющей изолировать поступление атмосферного воздуха в отбираемую пробу. С этой целью криогенная установка накрывалась изолирующей емкостью цилиндрической формы, объем которой 100 л. Для изолирования от атмосферы края емкости заглублялись в почву, которая затем сверху хорошо уплотнялась. При помощи вакуумного насоса мощностью 2 л/мин внутри емкости создавалась разряжение порядка 25–30 Па, контролируемое при помощи жидкостного манометра.

Для осуществления отбора проб водяных паров штольневового воздуха криогенную установку с изолирующей емкостью устанавливали на поверхность насыпи портала так, чтобы она располагалась ориентировочно на уровне центральной оси котловой полости штольни.

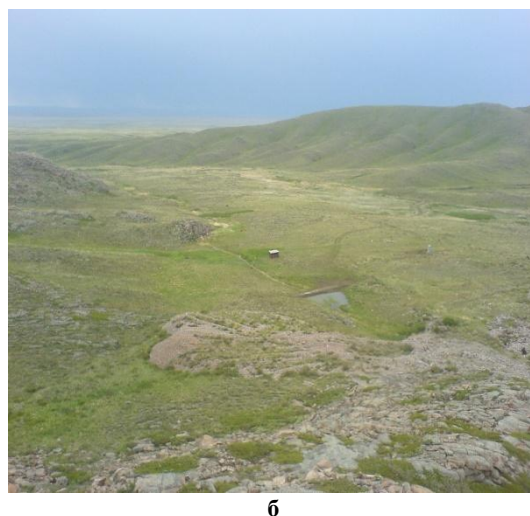
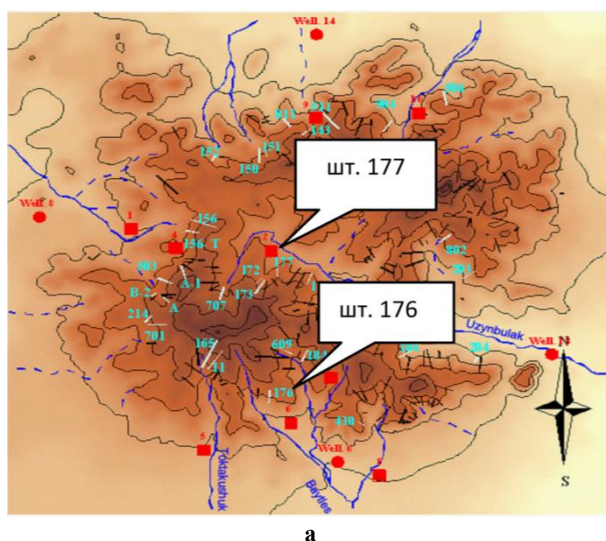


Рисунок 1. Место расположения участков исследования на территории горного массива Дегелен (а), общий вид участка исследования (б)

Во время проведения отбора проб воздуха проводилось обязательное фиксирование следующих параметров – температура окружающего воздуха и относительная влажность воздуха, которые измерялись при помощи электронного гигрометра [10]. Значения данных параметров применялись в дальнейшем для пересчета удельной активности трития в образце (Бк/кг) на объемную активность (Бк/м³).

Отбор проб растений. Выбор исследуемых растений производился на основании изучения растительного покрова отдельными методами геоботанического описания с выделением основных типов растительности, определением проективного покрытия и видового состава растений [11] и был основан на их классификации по отношению к влаге. В отдельных случаях произведено определение продуктивности растительного покрова методом укосов на 3-х площадках в 1 м² каждая.

Подготовка образцов для измерений удельной активности трития проводилась в соответствии с аттестованной методикой [12].

2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

2.1. Проведение оценки уровня и характера распределения трития в атмосферном воздухе в районе расположения штолен горного массива Дегелен

Исследование концентрации трития в атмосфере проводилось по двум направлениям – вдоль русла штольневых ручья и по профилям, расположенным

перпендикулярно руслу, с постепенным удалением от него (рисунок 2).

Расстояние между точками, расположенными вдоль русла ручьев, составляет порядка 50 м. Расстояние между перпендикулярными профилями составляло 50–100 м, между точками исследования в перпендикулярных профилях – 5–15 м равнозначно в правую и левую сторону от ручья.

2.1.1. Исследование характера распределения трития в атмосферном воздухе вдоль русла поверхностного водотока

Для проведения исследования вдоль русла водотока произведен отбор проб атмосферного воздуха в точках, максимально приближенных к руслу ручья, начиная от места выхода ручья на дневную поверхность. Протяженность профиля по руслу составила порядка 400 м. Результаты представлены на рисунке 3.

Анализ полученных данных показал, что распределение трития в атмосферном воздухе вдоль русла поверхностного водотока на обеих исследованных штольнях имеет схожий характер. Максимальные значения на обоих участках исследования, зафиксированные в местах выхода штольневых ручьев на поверхность, составили 1400 и 700 Бк/м³ в районе расположения штолен №№ 176 и 177, соответственно. На расстоянии порядка 400 м от начальной точки, значения концентрации трития в воздушной среде значительно снижаются и составляют уже порядка 50 Бк/м³ в районе штольни № 177 и 100 Бк/м³ – в районе штольни № 176.

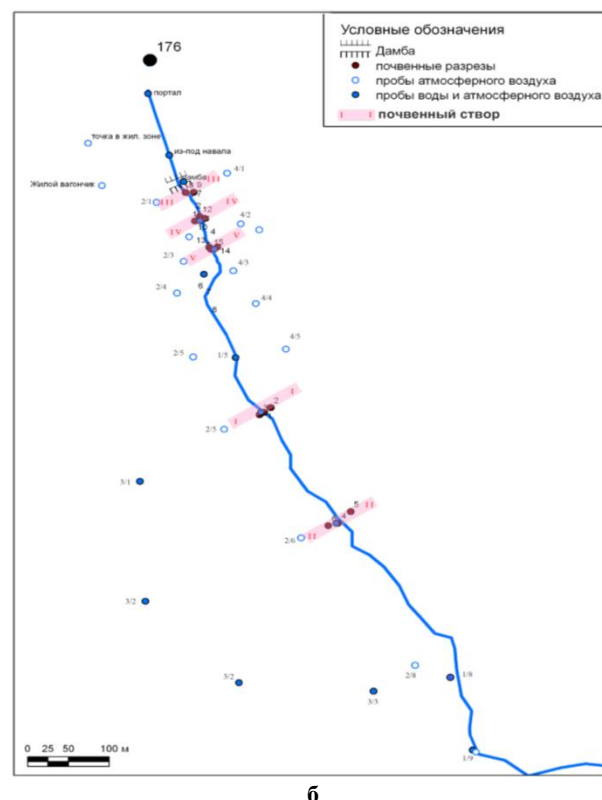
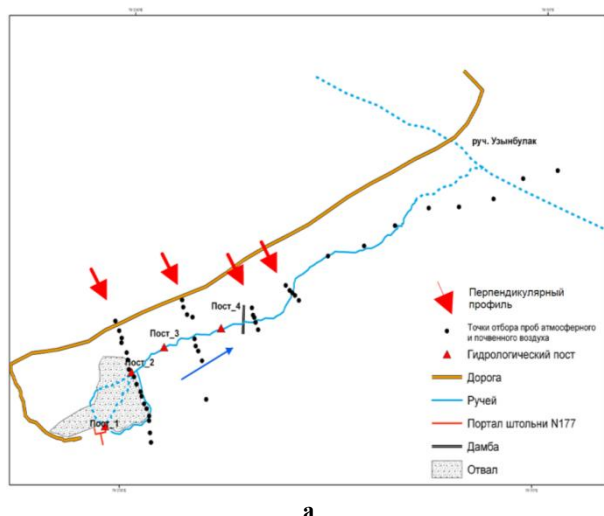


Рисунок 2. Схема расположения точек исследования на штольнях №177 (а) и №176 (б)

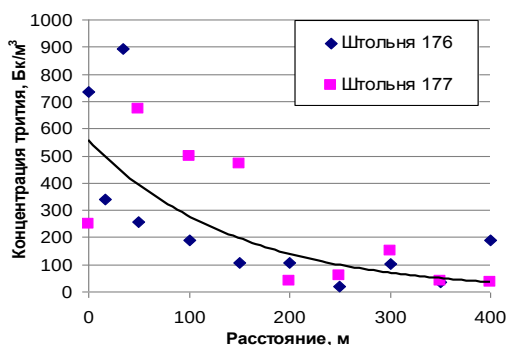


Рисунок 3. Изменение концентрации ^3H в атмосферном воздухе вдоль русла поверхностного водотока

Полученная картина отображает общий характер распространения трития в воздухе вдоль русла штольневых водотоков. Необходимо четко понимать, что в деталях подобный характер распределения трития свойственен лишь данным конкретным участкам.

2.1.2. Исследование концентрации трития по мере удаления от русла поверхностного водотока

Для проведения исследования характера распределения трития по мере удаления от поверхностного водного источника в русле ручья штольни № 177 были заложены перпендикулярные профили с точками отбора проб воздуха, равномерно удаляющиеся от центра русла в правую и левую сторону (рисунок 2, а). Полученные результаты представлены на рисунке 4.

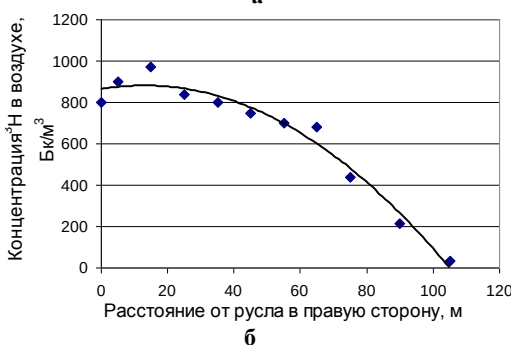
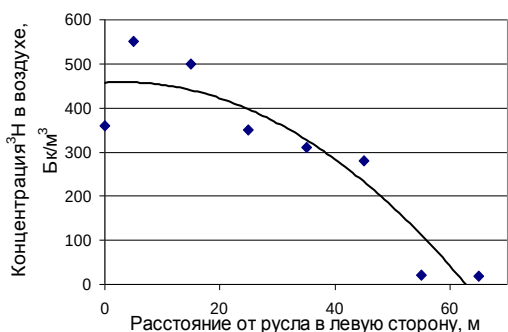


Рисунок 4. Изменение концентрации ^3H в атмосферном воздухе по мере удаления от русла поверхностного водотока

Максимальное значение концентрации трития в воздухе с правой стороны от русла практически вдвое превышает максимальное значение, полученное при исследовании атмосферного воздуха с левой стороны

– 1000 и 550 Бк/м³, соответственно. Причиной подобного распределения послужил ландшафт – правая сторона русла представляет собой впадину, обильно затопляемую водой в весенний период, что, вероятно, выступает в роли дополнительного источника поступления трития на данный участок. Левая же сторона, напротив, идет к возвышенности, ближе к скалистой местности, почва сухая, каменистая, дополнительно-го источника влаги извне практически не бывает.

Подобные исследования проведены по четырем перпендикулярным профилям. На рисунке отображен общий характер распределения трития по мере удаления от поверхностного водного источника, вытянутого вдоль осевой линии (рисунок 5). Линиями на рисунке представлены линии тренда, построенные по значениям концентрации трития в атмосфере на каждом профиле.

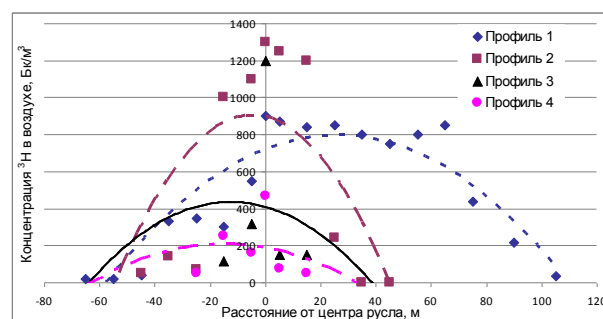


Рисунок 5. Характер распределения концентрации ^3H в атмосферном воздухе по мере удаления от открытого водотока

Концентрация трития в атмосфере в месте расположения штолен значительно снижается с увеличением расстояния в стороны от него.

Общая картина распределения трития в воздушной среде в месте расположения штолен с водопроявлениями представляет собой изоповерхность, имеющую куполовидную форму сечения (рисунок 6).

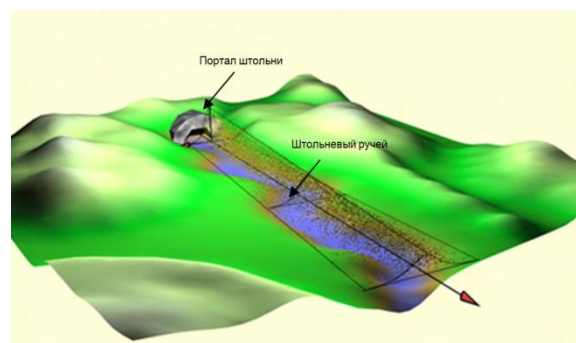


Рисунок 6. Характер распределения трития в воздушной среде в районе расположения штолен с водопроявлением

Полученная картина распределения трития в атмосфере относительно поверхностного водотока отображает лишь общий характер, применительно к данной местности. При изменении каких-либо топографических, гидрогеологических или ландшафтных

условий выбранной территории характер распределения трития в воздушной среде может несколько измениться, хотя общий принцип, вероятно, будет сохранен – тенденция к уменьшению концентрации трития в атмосфере по мере удаления от поверхностного водотока.

2.2. Изучение основных механизмов и характера распределения трития в атмосферном воздухе изучаемых экосистем

2.2.1. Характер распределения трития в системе вода – атмосферный воздух

Общая методология исследования. Для оценки вклада поверхностного водотока, загрязненного тритием, в загрязнение атмосферного воздуха проведено исследование зависимости концентрации трития в атмосфере от величины концентрации трития в воде на одном участке исследования. Были выбраны точки с различными значениями концентрации трития в воде и произведен сопряженный отбор проб водяных паров воздуха и воды. Одновременно с проведением исследования, основываясь на экспериментальных данных, был проведен аналитический расчет зависимости концентрации трития в атмосфере от концентрации трития в воде. Результаты исследования представлены на рисунке 7.

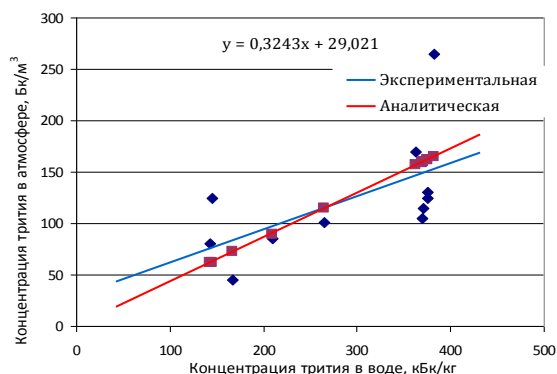


Рисунок 7. Зависимость концентрации ^3H в атмосферном воздухе от концентрации ^3H в воде

Проведенные исследования показали, что содержание трития в атмосферном воздухе изменяется в зависимости от содержания трития в воде практически прямо пропорционально и может быть аппроксимировано следующей линейной зависимостью:

$$C_{\text{Т в атмосфере}} [\text{Бк/м}^3] = 0,32 \cdot C_{\text{Т в воде}} [\text{кБк/кг}] + 30 \quad (4)$$

Согласно полученной зависимости, в формуле присутствует свободный член – +30, который отображает величину некой фоновой концентрации трития в атмосфере (вклад от других источников поступления) при концентрации трития в воде, равной «0».

Для подтверждения полученной зависимости, а также для возможности проведения прогнозной оценки уровня содержания трития в атмосфере расчетным методом, был проведен аналитический расчет концентрации трития в атмосфере вблизи поверхностного водотока.

Расчет проводился исходя из условий, что основным источником поступления трития в воздух в точках, максимально приближенных к ручью, в основном, является сам водный поток, загрязненный тритием. Величина концентрации трития в атмосфере зависит от интенсивности испарения водяных паров с поверхности ручья, а также скорости и характера их распространения в воздухе [13, 14].

Поскольку отбор проб осуществлялся в непосредственной близости от ручьев (~0,5 м от кромки воды), и при небольших скоростях ветра сколь угодно значимого рассеивания водяных паров в поперечных к ветру направлениях на таком расстоянии от источника загрязнения происходить не будет, поэтому использование Гауссовой модели распространения примесей в воздухе, зависящей от коэффициентов, связанных с категориями устойчивости атмосферы, нецелесообразно. В настоящей работе предполагается, что водяные пары равномерно распределяются в приповерхностном объеме воздуха за время прохождения ветром расстояния от одного берега ручья до другого, и отсюда концентрация трития, поступающего из водного потока, описывается следующим выражением:

$$C = E \cdot \text{TFC} \cdot A_{\text{воды}} \cdot (1/H) \cdot (L/v \cdot \sin \alpha), \quad \text{где} \quad (5)$$

C – концентрация трития в воздухе, Бк/м³; E – коэффициент испарения воды; TFC – температурный корректирующий коэффициент; $A_{\text{воды}}$ – активность трития в воде, Бк/кг (использованы практические данные); v – скорость ветра относительно поверхности почвы, м/с; α – угол между направлением ветра и направлением движения жидкости, радиан; H – высота (равна высоте криогенной установки), м; L – ширина ручья, м.

Интенсивность испарения (коэффициент испарения), в общем виде, является функцией давления насыщенных паров, температуры воды и воздуха, теплоты парообразования, скорости ветра, воды и пр., и описывается в литературе с помощью полуэмпирических формул. В настоящей работе используется методология, разработанная в Агентстве по охране окружающей среды США (EPA U.S.), как имеющая официальный статус федерального технического руководства. В соответствии с этой методологией испарение воды определяется следующим выражением [15]:

$$E = 10,4 \cdot u^{0,78} \cdot M^{0,667} \cdot P_{\text{ж}} / R \cdot T_{\text{ж}}, \quad \text{где} \quad (6)$$

E – коэффициент испарения, кг/с·м²; u – скорость воздуха относительно поверхности воды, м/с; M – молярный вес жидкости, 18 г/моль; $P_{\text{ж}}$ – давление насыщ. пара жидкости при заданной температуре жидкости, кПа; R – универсальная газовая постоянная, 82,05 атм·см³/моль·К; $T_{\text{ж}}$ – температура жидкости, К.

Поскольку при получении данного выражения предполагалось равенство температур воды и окружающей среды, то для условий, где для данных составляющих характерна разница температур (как в настоящем исследовании), рекомендуется домно-

жить коэффициент испарения на температурный корректирующий коэффициент [16]:

$$TFC = P_{\text{ж}} \cdot T_{\text{возд}} / P_{\text{возд}} \cdot T_{\text{ж}}, \text{ где} \quad (7)$$

$P_{\text{ж}}$ – давление насыщенного пара при температуре $T_{\text{ж}}$, кПа; $T_{\text{ж}}$ – температура жидкости, К; $P_{\text{возд}}$ – давление насыщенного пара при температуре $T_{\text{возд}}$, кПа; $T_{\text{возд}}$ – температура окружающей среды, К.

Расчет концентрации трития проводился по средним значениям диапазона следующих параметров – $T_{\text{ж}}$, $T_{\text{возд}}$, v , H , L , $A_{\text{вод}}$, полученных экспериментальным путем (таблица 1).

Таблица 1. Исходные данные
для проведения расчетной оценки

Параметр	$T_{\text{ж}}$, К	$T_{\text{возд}}$, К	v , м/с	H , м	L , м
Среднее	288	300	1	0.7	1
Минимум	286	293	0.5	0.6	0.8
Максимум	290	303	1.3	0.8	1.2

На основании проведенных расчетов построена аналитическая кривая зависимости концентрации трития в атмосфере от концентрации трития в воде (рисунок 7). Значения концентрации трития, полученные экспериментальным и аналитическим методом, отличаются друг от друга не более чем на 20 %.

Для оценки степени влияния отдельных значимых параметров на величину концентрации трития в воздухе вблизи поверхностного водотока была проведена оценка чувствительности модели от основных параметров (рисунок 8). Для проведения оценки выбраны три наиболее значительных параметра – температура воздуха, температура воды, скорость ветра.

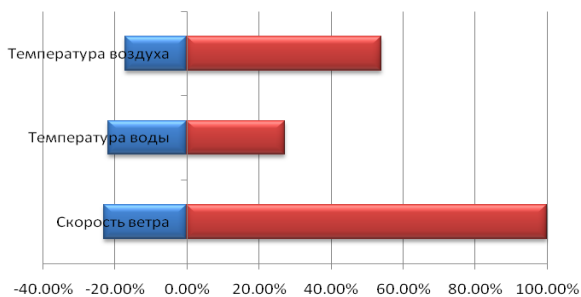


Рисунок 8. Влияние отдельных параметров на концентрацию трития в воздухе

Проведенный анализ чувствительности показал, что наибольшее влияние на значение концентрации трития в воздухе оказывают величины температуры воздуха и скорости ветра. Неопределенность в значении температуры водной среды влияет на концентрацию трития в воздухе значительно меньше, хотя полностью исключить данный параметр из рассмотрения нельзя.

Согласно проведенным исследованиям и аналитическому расчету, концентрация трития в атмосферном воздухе вблизи поверхностного водотока, загрязненного тритием, пропорционально изменяется в зависимости от концентрации трития в воде, с

учетом ряда влияющих параметров, основные из которых скорость ветра, температура воздуха и температура воды. Расчеты величины концентрации трития в воздухе по концентрации трития в воде, проведенные с использованием экспериментальной и теоретической формул, согласуются.

2.2.2. Характер распределения трития в системе штольневый воздух – атмосферный воздух

Общая методология исследования. Основная цель – проведение оценки значимости вклада поступления трития в атмосферный воздух из полости штольни.

Первым этапом исследования было изучение характера распределения трития в воздушной среде внутри полости штольни. Для достижения поставленной задачи выбраны четыре штольни без водопроявлений, внутри которых проводился отбор проб водяных паров воздуха, начиная от портала штольни и далее вглубь, с шагом от 10 до 60 м, в зависимости от условий проведения работ.

Вторым этапом исследования было изучение уровня концентрации трития у порталов «законсервированных» штолен без какого-либо видимого водопроявления. Так как котловая полость штольни после «консервации» не является абсолютно герметичной и не исключено движение воздуха по штольне через зону дробления на дневную поверхность и в обратном направлении за счет механизмов газовой конвекции, существует возможность миграции трития с воздушными потоками из полости штольни в атмосферу. Отбор проб водяных паров штольневого воздуха проводился непосредственно на портале штольни, а также в 50 м от каждой штольни для оценки вклада штольневого воздуха в тритиевое загрязнение воздушной среды.

Результаты исследования концентрации трития в воздушной среде внутри полости штолен представлены на рисунке 9.

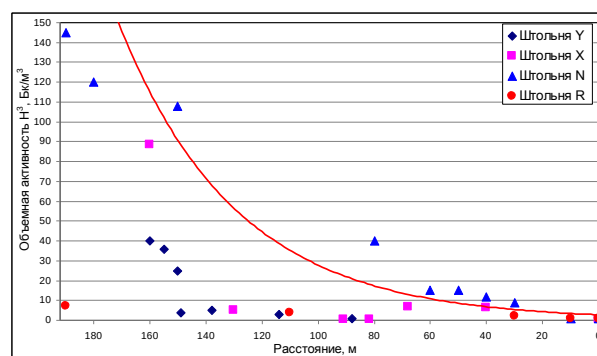


Рисунок 9. Характер распределения трития с воздушными потоками внутри полости штольни

Анализ полученных данных показал, что значения концентрации трития в воздушной среде полостей исследуемых штолен изменяются в среднем в пределах от 140 до 1 Бк/м³ в глубине штольни и на выходе, соответственно (по результатам исследования четырех штолен). Максимальная концентрация

трития в полости штольни соответствует отметке, наиболее близко расположенной к концевому боксу, где и был произведен взрыв, и основное количество образовавшегося в результате взрыва трити, должно находиться именно там. По мере приближения к выходу из штольни концентрация трития значительно падает как вследствие удаления от эпицентра взрыва, так и вследствие диффузионного перемешивания слоев штольневой воздуха с атмосферным.

На втором этапе исследования проведена оценка вклада трития, содержащегося в штольневом воздухе, в тритиевое загрязнение воздушной среды на приустьевых участках штолен (рисунок 10).

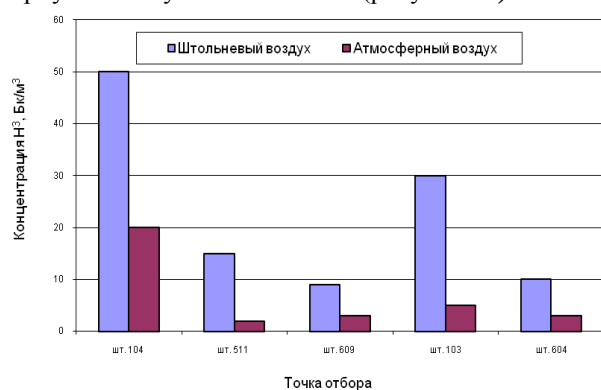


Рисунок 10. Концентрация ^3H в воздухе на припортальных участках штолен

Результаты исследования показали принципиальную возможность выхода трития с воздушными потоками из полостей «законсервированных» штолен на поверхность. Концентрация трития на порталах штолен достигает порядка 50 Бк/м³, что существенно, если учитывать, что фоновые значения концентрации трития в воздухе в пределах горного массива Дегелен составляют порядка 1–2 Бк/м³. Однако дальнейшие исследования показали, что концентрация трития в атмосфере на расстоянии 50 м от портала штольни составляет 5–15 % от концентрации трития в штольневом воздухе, что находится практически на уровне фона и не может вносить существенного вклада в тритиевое загрязнение атмосферы.

Таким образом, концентрация трития в штольневом воздухе не вносит существенного вклада в формирование тритиевого загрязнения атмосферного воздуха в районе расположения штолен. Штольневый воздух далее не рассматривается как значимый источник поступления трития в атмосферу.

2.2.3. Характер распределения трития в системе почвенный воздух – атмосферный воздух

Общая методология исследования. Так как известно, что часть подземных вод расходуется на испарение с поверхности земли [17], можно предположить, что при данных условиях тритий с испаряемой влагой может поступать в атмосферу.

На представленном графике (рисунок 11) показано, что испарение подземных вод начинается с глу-

бины 2,5 м, где с учетом транспирации растениями количество испаряемой воды составляет 100 мм. Максимальных значений до 700 мм в год этот процесс достигает на глубинах до 20 см. При построении графика взяты средние значения, без учета таких параметров, как проницаемость, пористость почв, значение которых изменяется в зависимости от вида почв и в значительной степени влияет на количество влаги, испаряемой с поверхности почвы.

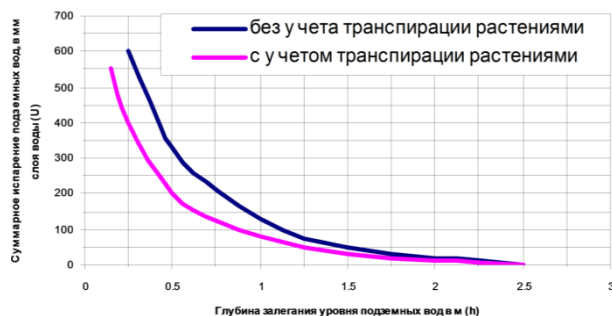


Рисунок 11. Характер испарения влаги с поверхности земли в зависимости от глубины залегания подземных вод

Цель исследования – определение уровня концентрации трития в почвенном воздухе и проведение оценки вклада трития, содержащегося в почвенном воздухе, в тритиевое загрязнение атмосферы.

Для проведения эксперимента выбраны сухие русла основных ручьев горного массива Дегелен, где согласно гидрогеологическим картам проходят подземные водотоки и, как следствие, возможно поступление трития с почвенным воздухом в атмосферу. Согласно данным проведенных исследований, концентрация трития в грунтовых водах на площадке "Дегелен" составляет порядка 300 кБк/кг [18]. Отбор проб водяных паров почвенного и атмосферного воздуха проводился сопряжено, на минимальном расстоянии друг от друга (до 50 см) в одной и той же точке исследования. Схема проведения отбора проб представлена на рисунке (рисунок 12).

Результаты проведенного исследования приведены на следующем рисунке (рисунок 13).

Значение содержания трития в почвенном воздухе варьирует в широких пределах. В ходе проведения анализа данных отмечено, что в ряде случаев концентрация трития в почвенной влаге превышает либо соизмерима с концентрацией трития в атмосфере. Полученная зависимость аппроксимирована и описана следующей функцией:

$$C_{\text{Т в ат. воздухе}} [\text{Бк/м}^3] = 1,6 \cdot C_{\text{Т в почв. воздухе}} [\text{Бк/м}^3] + 30 \quad (9)$$

Фоновая концентрация трития в атмосфере при условии, что концентрация трития в почвенном воздухе равняется нулю, описывается свободным членом данного уравнения, который в случае проведенного эксперимента составил 30 Бк/м³.

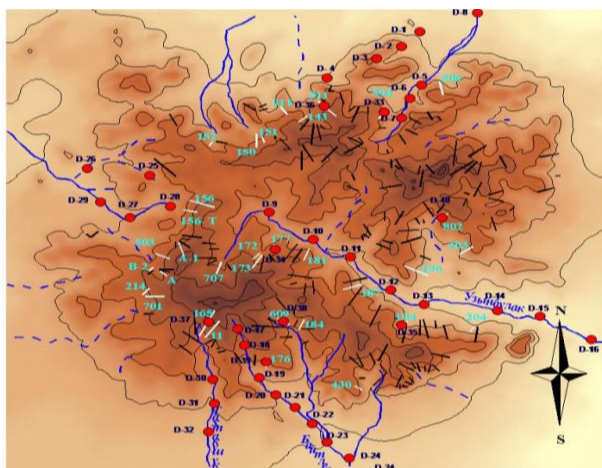


Рисунок 12. Точки отбора проб водяных паров атмосферного и почвенного воздуха на территории горного массива Дегелен

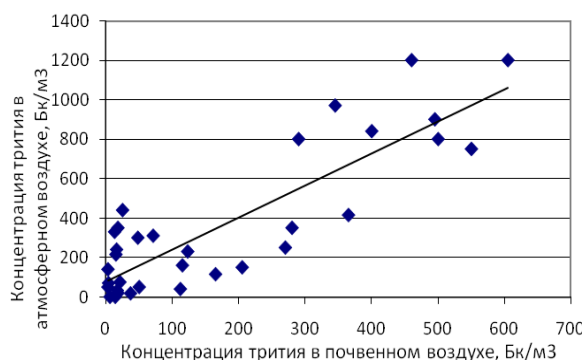


Рисунок 13. Зависимость концентрации ^3H в атмосферном воздухе и почвенном воздухе

Проведенное исследование показало, что в местах залегания загрязненных тритием подземных вод (на глубине не более 2,5–3 м) происходит процесс поступления трития в атмосферу в результате процессов эманации с поверхности почвы. При наличии данных о концентрации трития в почвенной влаге можно проводить оценочные расчеты концентрации ^3H , поступающего в атмосферный воздух, и таким образом проводить оценку загрязнения тритием атмосферы на выбранном участке исследования.

Учитывая специфические особенности площадки "Дегелен" – высокая концентрация трития в грунтовых водах, небольшая глубина залегания, выявленный характер распределения трития подходит только для данной территории или территорий с похожими характеристиками грунтовых вод и, возможно, не будет иметь место на других участках исследования.

2.2.4. Характер распределения трития в системе растения – атмосферный воздух

Общая методология исследования. В ходе проведенных исследований для проведения оценки загрязнения тритием штольневых ручьев площадки "Дегелен" выявлено, что значения концентрации трития в воде достигает порядка 300–400 кБк/кг

[19]. Предполагалось, что при столь высоких концентрациях в воде растения береговой зоны также должны иметь высокую концентрацию трития и, в свою очередь, выступить в роли источника поступления трития в воздушную среду вследствие процессов транспирации растений.

Первоначально был проведен эксперимент по исследованию концентрации трития в свободной воде растения волоснец (*Leymus angustus*) береговой зоны штольневого ручья (штольня №176). Отбор проб растений проводился по профилю, расположенному перпендикулярно основному руслу штольневого ручья, с шагом между точками исследования равным 10 м. Результаты представлены на рисунке (рисунок 14).

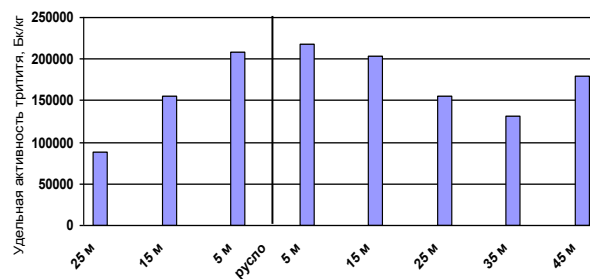


Рисунок 14. Исследование концентрации трития в свободной воде растений

В результате исследования были получены значения концентрации трития, изменяющиеся в пределах от 80000 до $2,2 \cdot 10^5$ Бк/кг. Основываясь на полученных данных, проведен ряд экспериментов по выявлению возможной зависимости между концентрацией трития в атмосферном воздухе, концентрацией трития в растениях и продуктивностью растительного покрова.

Для этого в районе штольни № 177, перпендикулярно штольневому ручью заложены 4 профиля. Каждый профиль состоял из нескольких исследовательских площадок – от 5 до 18 – в зависимости от рельефа местности. Расстояние между исследовательскими площадками составляло 5–15 м. Отбор проб воздуха и растений (смешанных образцов) проводился сопряженно – на каждой исследовательской площадке выделялся участок 1 кв.м, в центре которого проводился отбор проб водяных паров воздуха. Далее растительность на участке скашивалась для определения продуктивности покрова.

Анализ полученных данных показал, что значения концентрации трития в свободной воде растений выбранных участков изменяются в пределах от 3 до 250 кБк/кг. Значения концентрации трития в воздухе на тех же исследовательских площадках изменяются в пределах от 80 до 1200 Бк/м³.

По результатам полученных данных построены графики соотношения содержания трития в атмосферном воздухе и в растительности (рисунок 16, а) и изменение концентрации трития в атмосфере в зависимости от продуктивности растительного покрова, загрязненного тритием (рисунок 16, б).

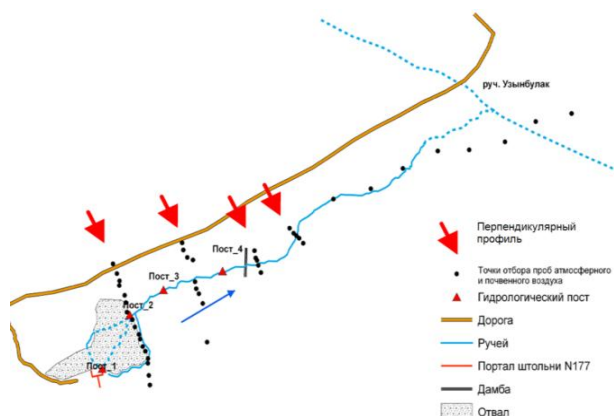


Рисунок 15. Схема отбора проб атмосферного воздуха и растений (по перпендикулярным профилям) в районе расположения штольни № 177

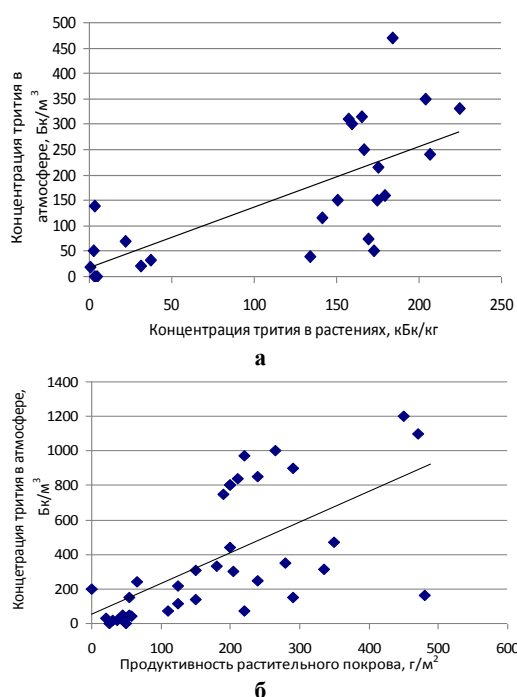


Рисунок 16. Зависимость концентрации ^3H в атмосферном воздухе от концентрации ^3H в растениях (а) и от продуктивности растительного покрова, загрязненного ^3H (б)

Данные, отображенные на полученных графиках, аппроксимированы линейной функцией. Используя полученные зависимости, можно проводить оценочное прогнозирование содержания трития в атмосферном воздухе по содержанию трития в растениях, используя следующее эмпирическое уравнение:

$$C_{\text{Т в ат. воздухе}} [\text{Бк/м}^3] = 1,2 \cdot C_{\text{Т в растениях}} [\text{кБк/кг}] + 50 \quad (10)$$

ЛИТЕРАТУРА

1. Кузнецов, В. И. Водород: именитые изотопы / В.И. Кузнецов // Химия и Жизнь. - 1981. - № 1.
2. Эванс, Э. Тритий и его соединения / Э. Эванс. - М.: «Атомиздат», 1970.
3. Беловодский, Л.Ф. Тритий / Л.Ф. Беловодский, В.К. Гаевой, В.И. Гришмановский. - М.: Атомиздат, 1985.
4. Ферронский, В.И. Природные изотопы гидросферы / В.И. Ферронский, В.Т. Дубинчук, В.А. Поляков [и др.]. - М.: Недра, 1975.

Полученные экспериментальные зависимости подтверждают вклад растений в формирование тритиевого загрязнения атмосферы.

Согласно приведенному формату, в формуле присутствует свободный член - +50, который отображает фоновую концентрацию трития на участках исследования, что указывает так же на присутствие других источников поступления трития в атмосферу.

При проведении оценочных прогнозов необходимо учитывать продуктивность растительного покрова на участке исследования.

Выводы

Исследование уровней концентрации трития в воздушной среде на территории горного массива Дегелен в местах расположения штолен с водопроявлениями, показало, что тритиевое загрязнение атмосферы на приустьевых участках штолен сформировано за счет нескольких основных источников. Это - почвенный воздух в местах неглубокого залегания грунтовых вод, поверхностные воды и растительность. Основные участки, загрязненные тритием, расположены вдоль русла ручьев, за счет выноса трития водотоками из полостей штолен.

Концентрация трития в воздухе значительно снижается с увеличением расстояния от источника поступления за счет диффузионного перемешивания воздушных слоев, и на расстоянии порядка 50-70 м снижается на порядок и более от первоначального.

Значения концентрации трития, зафиксированные в воздушной среде на приустьевых участках штолен, в ряде случаев, достигают более 1000 Бк/м^3 , что не превышает, но находится близко к пределу среднегодовой допустимой объемной активности в воздухе для населения, которая составляет 1900 Бк/м^3 [19].

Необходимо отметить, что при изменении условий и места эксперимента, полученные зависимости могут видоизменяться, а некоторые источники поступления трития в атмосферу (например, почвенная влага) - отсутствовать. В данной работе рассмотрена картина уровня и характера распределения трития в воздушной среде, применительно к условиям площадки "Дегелен", а именно, к районам расположения штолен с водопроявлениями.

Авторы статьи выражают благодарность сотрудникам Института радиационной безопасности и экологии Айдарханову А.О., Ульянкину В.А., Коровину В.А., Смирнову А.С. за помощь при обеспечении и проведении экспедиционных работ, Яковенко Ю.Ю., Еременко Е.А., Елизарьевой Н.А. за построение картографического материала, Геновой С.В. и группе общей химии ОРСМОС за пробоподготовку растений и водяных паров воздуха.

5. Ляхова, О.Н. Исследование содержания трития в объектах окружающей среды на территории испытательной площадки Дегелен / О.Н. Ляхова, С.Н. Лукашенко, М.А. Умаров, А.О. Айдарханов / Вестник НЯЦ РК. – 2007. – Вып.4. – С.80 – 86.
6. Солодов, Н. А. Геохимия лития, рубидия и цезия / Н. А. Солодов, Л. С. Балашов, А. А. Кременецкий. - М., 1980.
7. Chaudry, M.N. Lithium-aluminium micas from the Meldong aplite / M.N. Chaudry, R.A. Howie. - Mineralogical Magazine 39. - 1973.
8. Романов, Г.Н. Поведение в окружающей среде и биологическое действие трития Проблемы радиэкологии / Г.Н. Романов. – М.: ВИНТИ, 1983.
9. Отчет о научно-технической деятельности Института радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, выполненного по НТП 0346 "Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан" за 2005 год: отчет информационный / ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Птицкая Л.Д. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2005. – 39 с.
10. Методы измерения трития. Рекомендации НКРЗ, США: [пер. с англ.]. - М.: Атомиздат, 1978.
11. Полевая геоботаника- Т. 1.-1959.-444 с.; Т. 2.-1960.-500 с.; Т. 3.-1964.-530 с.; Т.4.-1972.-336 с.; Т.5. -1976.-320 с. -М.: Наука.
12. Качество воды – определение активности трития, соответствующей данной концентрации – жидкостной метод сцинтилляционного счета. Международный стандарт ISO 9698:1989 (E). – Введ.1989-12-01.– Москва: ВЦП НТЛИД, 1990. – 17с. – Инв. № Т-1008.
13. Jones, R. Measurement and Analysis of Evaporation From an Inactive Outdoor Swimming Pool / R. Jones, C. Smith, G. Löf //Solar Energy. – 1994. - V. 53. - No 1. - P.3.
14. Technical Guidance For Hazards Analysis. - U.S. EPA and U.S. FEMA, 1987.
15. Stiver, W. A Spill Hazard Ranking System for Chemicals, Environment Canada First Technical Spills Seminar, Toronto / W. Stiver, D. Mackay. - Canada, 1993.
16. Risk Management Program Guidance For Offsite Consequence Analysis, U.S. EPA publication EPA-550-B-99-009. – 1999, april.
17. Белянин, В.И. Опыт определения испарения грунтовых вод в аридных условиях Восточного Казахстана / В.И. Белянин. - Серия VIII. – Вып.1. - ЭИ ВИМС, 1978.
18. Изучение современного состояния и последствий деятельности объектов атомной энергетики Семипалатинского полигона на окружающую среду [Этап: «Исследование экосистем, подверженных влиянию радиоактивно-загрязненных водотоков»: отчет о НИР (ИРБЭ НЯЦ РК по НТП) /ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Лукашенко С.Н. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2009.
19. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99): СП 2.6.1. 758-99; введ. в действие 01.01.2000. – Алматы: Агентство по делам Здравоохранения РК, 1999. - 80с. – ISBN 9965-501-42-4.

"ДЕГЕЛЕН" ТАУЛЫ МАССИВІ ШЕГІНДЕГІ АУА БАССЕЙНІНІҢ ТРИТИЙМЕН ЛАСТАНУЫН ҚАЛЫПТАСТЫРУ МЕХАНИЗМДЕРІ

Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Ларионова Н.В.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Курчатов, Қазақстан

Тритиймен ластану мәселесі табиғи орталардың радиоактивті ластануында ерекше орын алады. Аталған жұмыста «Дегелен» алаңында орналасқан су шыққан №176 және №177 штольнялар үлгісінде экожүйенің атмосфералық ауасында тритийдің таралу деңгейіне және сипатына бағалау жүргізілді. Тритиймен ластанған беткі су ағынына қатысты тритийдің атмосферада таралуының жалпы сипаттамасы келтірілген, зерттелеіп жатқан экожүйенің атмосфералық ауасында тритийдің таралуының негізгі механизмдері зерделенді. Тритийдің судағы шоғырлануы бойынша тритийдің атмосферадағы шоғырлануына талдамалық есеп жүргізілді. «Дегелен» алаңы аумағындағы ауа ортасында тритий таралуының жалпы сипаттамасы келтірілді.

MECHANISMS OF THE CONTAMINATION FORMATION OF OF AIR BY WITH TRITIUM WITHIN THE "DEGELEN" MASSIF

O.N. Lyakhova, S.N. Lukashenko, N.V. Larionova

Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

Problem of tritium contamination has a special place in the radioactive contamination of the environment. In this paper we had assessed a level and distribution of tritium in the atmosphere air of ecosystems with water seepage, by the example of tunnels № 176 and № 177, located on "Degelen" site. There has been presented general nature of tritium distribution in the atmosphere relative to surface of a watercourse which has been contaminated with tritium. The basic mechanisms were studied for tritium distribution in the air of studied ecosystems, namely, the distribution of tritium in the systems: water – atmosphere, tunnel air - atmosphere, soil moisture - atmosphere, vegetation - atmosphere. An analytical calculation of tritium concentration in the atmosphere by the concentration of tritium in water has been performed. Experimentally there was obtained dependence for the predictive assessment of tritium concentrations in the air on the concentration of tritium in one of the income sources - water, tunnel air, soil moisture, vegetation. General nature of tritium distribution in the air in the area "Degelen" is given.

УДК 577.4:615.849:504.064:539.16:622.258.4

ФОРМИРОВАНИЕ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ НА ШТОЛЬНЯХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»

Мустафина Е.В., Лукашенко С.Н., Осинцев А.Ю., Брянцева Н.В.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье представлены результаты расчетов индивидуальных доз персонала при проведении работ по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений на штольнях площадки «Дегелен». Определены основные факторы, влияющие на формирование индивидуальных доз при проведении работ, проведен расчет дозовых нагрузок на персонал от внешних источников ионизирующего излучения и вследствие ингаляционного поступления радионуклидов, разработаны рекомендации по оптимизации процесса обеспечения радиационной безопасности при проведении работ по сооружению дополнительной инженерной защиты.

ВВЕДЕНИЕ

С 2005 г. на территории СИП проводятся работы по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений на штольнях площадки «Дегелен». Данные работы проводятся на трехсторонней основе Российская Федерация – Республика Казахстан – США.

Проведение работ по сооружению дополнительной защиты на объектах может привести к повышенным дозам облучения персонала и загрязнению окружающей среды радиоактивными веществами.

При проведении работ специалисты ИРБЭ НЯЦ РК обеспечивали функционирование системы радиационной безопасности, включающей в себя предварительное радиационное обследование, обеспечение радиационной безопасности при сооружении защиты и заключительное обследование по окончании работ. Основные цели системы обеспечения радиационной безопасности – предотвращение переоблучения задействованного в работах персонала и негативного влияния проведенных работ на окружающую среду.

Обобщенным критерием эффективности мероприятий по обеспечению радиационной безопасности персонала являются дозы профессионального облучения [1]. Дозиметрическая информация после обработки и обобщения становится исходным материалом для оценки эффективности всей системы радиационной безопасности и служит основой для разработки практических рекомендаций по улучшению условий труда персонала при проведении радиационно-опасных работ. Целью полной оценки индивидуальных доз и их контроля является не допущение превышения дозовых пределов персонала и получение информации для оптимизации мероприятий по РБ.

1. МЕТОДЫ СОЗДАНИЯ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ИНЖЕНЕРНОЙ ЗАЩИТЫ

Штольня – это горизонтальная выработка в горной породе, площадью сечения $\sim 7-9 \text{ м}^2$ и протяженность до 2 км (рисунок 1).

Для снижения угрозы распространения отходов ядерной деятельности (ОЯД) на объектах создается дополнительная защита, основанная на заполнении

полостей штольни связующим материалом, исключающим возможность несанкционированного извлечения ОЯД.

Создание дополнительной защиты в зависимости от исходных данных к заданию на проектирование осуществляется двумя методами:

- создание дополнительной инженерной защиты через вертикальные скважины, пробуренные с поверхности горного массива – вертикальный метод;
- создание дополнительной инженерной защиты посредством вскрытия портала сооружения и последующей горной выработки штольня – горизонтальный метод.

Создание дополнительной инженерной защиты штолен в зависимости от выбранного метода работ включает в себя ряд основных этапов:

Вертикальный метод

- подготовительные работы;
- бурение поисковых скважин в полость штольни;
- создание дополнительной инженерной защиты через вертикальные скважины.

Время работ на штольнях при сооружении дополнительной инженерной защиты на штольнях вертикальным методом варьировалось от 1,5 до 3 месяцев.

Горизонтальный метод

- подготовительные работы;
- вскрытие портала штольни и расчистка полости штольни от обрушений и завалов;
- удаление бетонных «пробок» и забивок;
- создание дополнительной инженерной защиты;
- закрытие объекта.

Время работ на штольнях при сооружении дополнительной инженерной защиты на штольнях горизонтальным методом варьировалось от 3,5 до 5 месяцев.

ФОРМИРОВАНИЕ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ НА ШТОЛЬНЫХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»

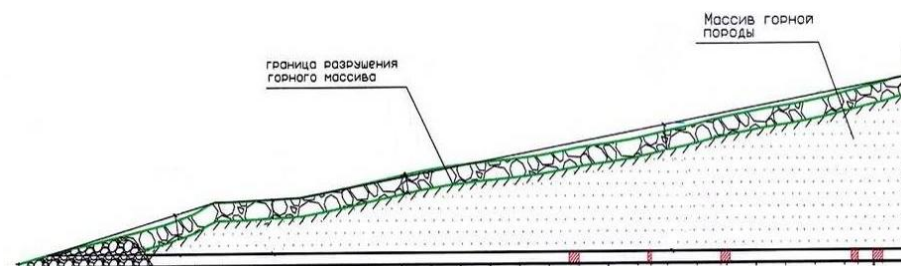


Рисунок 1. Схема штольни

В зависимости от метода создания дополнительной защиты штольням было присвоено условные обозначения:

- с горизонтальным методом создания дополнительной защиты – Г1, Г2, Г3, Г4;
- с вертикальным методом создания дополнительной защиты – В1, В2, В3, В4, В5.

2. РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА НА МЕСТЕ ВЕДЕНИЯ РАБОТ

При проведении работ по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений на штольнях площадки «Дегелен» проводился постоянный

радиационный контроль. Система обеспечения радиационной безопасности при проведении работ включала в себя комплекс ежедневных измерений радиационных параметров на рабочем месте и жилом лагере и: измерения МЭД, плотности потока β -частиц и объемной активности радионуклидов в воздухе. Контроль радиационных параметров на рабочем месте и в полевом лагере проводился ежедневно. Максимальные и минимальные значения радиационных параметров, зафиксированные за период ведения работ для каждой штольни, представлены в таблице и на рисунках 2-4 (таблица 1).

Таблица 1. Данные по радиационной обстановке на месте ведения работ

Словное обозначение штольни	МЭД, мкЗв/ч		Плотность потока β -частиц, част/(мин·см ²)		ЭРОА ²²² Rn, Бк/м ³		ЭРОА ²²⁰ Rn, Бк/м ³		Объемная активность в воздухе, Бк/м ³					
	min	max	min	max	min	max	min	max	²⁴¹ Am		¹³⁷ Cs		³ H	
Г1	0,14	50	<10	4·10 ⁴	<4	1·10 ⁴	<8	4·10 ³	<6·10 ⁻⁷	8·10 ⁻²	<2·10 ⁻⁵	1·10 ⁻²	<5·10 ⁻²	4·10 ⁻¹
Г2	0,19	2,7	<10	3·10 ²	<4	4·10 ³	<8	4·10 ³	<8·10 ⁻⁶	<5·10 ⁻³	<6·10 ⁻⁵	<8·10 ⁻³	<3·10 ⁻¹	2·10 ¹
Г3	0,12	3,98	<10	2·10 ²	<4	4·10 ⁴	<8	5·10 ²	2·10 ⁻⁵	6·10 ⁻³	<9·10 ⁻⁶	4·10 ⁻¹	<1·10 ⁻¹	7·10 ¹
Г4	0,16	16	<10	2·10 ⁴	<4	3·10 ²	<8	2·10 ¹	<2·10 ⁻⁵	<3·10 ⁻²	<3·10 ⁻⁶	<3·10 ⁻¹	<1·10 ⁻²	8·10 ⁰
В1	0,12	0,30	<10	1·10 ¹	<4	1·10 ³	<8	-	7·10 ⁻⁵	<7·10 ⁻⁴	<8·10 ⁻⁵	<9·10 ⁻³	<1·10 ⁻¹	3·10 ¹
В2	0,15	0,30	<10	2·10 ¹	<4	1·10 ²	<8	-	<2·10 ⁻³	<5·10 ⁻³	<8·10 ⁻³	<1·10 ⁻²	<5·10 ⁻¹	5·10 ⁰
В3	0,10	0,18	<10	1·10 ¹	<4	1·10 ²	<8	4·10 ³	<4·10 ⁻⁵	<5·10 ⁻⁴	<2·10 ⁻⁴	<6·10 ⁻³	<5·10 ⁻²	8·10 ⁻¹
В4	0,17	0,34	<10	6·10 ⁴	<4	2·10 ²	<8	-	<3·10 ⁻⁵	<2·10 ⁻³	<5·10 ⁻⁵	<8·10 ⁻³	<1·10 ⁻¹	4·10 ⁰
В5	0,18	0,20	<10	4·10 ⁴	<4	4·10 ¹	<8	-	<1·10 ⁻⁷	3·10 ⁻³	<3·10 ⁻⁷	<5·10 ⁻³	<7·10 ⁻³	7·10 ⁻²

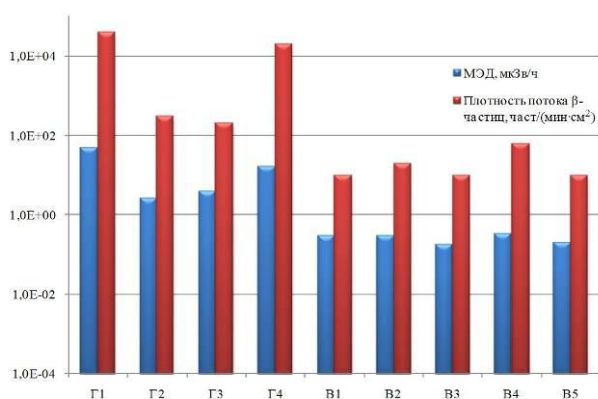


Рисунок 4. Максимальные значения радиационных параметров за период проведения работ

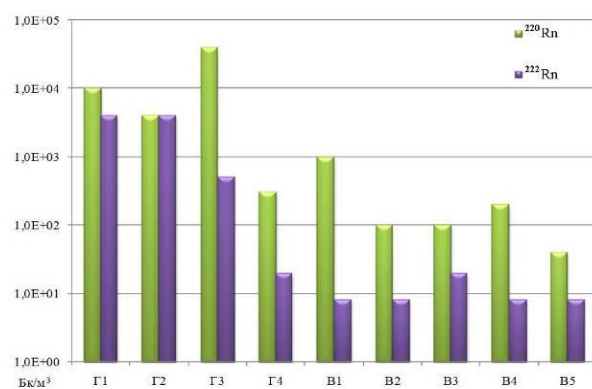


Рисунок 4. Максимальные значения объемной активности ДПР радона в воздухе за период проведения работ

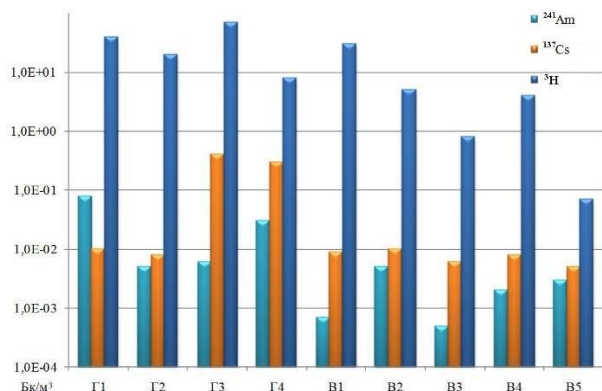


Рисунок 4. Максимальные значения объемной активности ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ³H в воздухе за период проведения работ

Результаты измерений радиационных параметров на месте ведения работ показывают, что штольни с горизонтальным методом создания дополнительной защиты характеризуются более высокими значениями контролируемых радиационных параметров.

3. ОСНОВНЫЕ ФАКТОРЫ, ВЛИЯЮЩИЕ НА ФОРМИРОВАНИЕ ДОЗ

Эффективная доза при проведении работ на исследуемых штольнях включает дозу внешнего облучения и дозу внутреннего облучения от поступления радионуклидов, обусловленную нахождением людей на загрязненной территории.

Согласно исходным данным можно считать, что в настоящее время возможными источниками радиоактивного загрязнения штолен площадки «Дегелен» являются осколки деления ²³⁹Pu, остатки делящегося вещества и продукты активации [2].

Расчетные данные вероятной удельной активности позволяют предположить, что в результате возможного выхода радионуклидов из штольни на поверхность территория штольни и прилегающих участков может быть загрязнена в значимых концентрациях следующими основными радионуклидами:

- осколки деления – ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y, ¹²¹Sn-m, ¹³⁷Ba-m, ¹⁵¹Sm, ¹⁵⁵Eu, ⁹⁹Tc, ¹³⁷Cs;
- остатки делящегося вещества – ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu, ²⁴²Pu, ²⁴¹Am;
- продукты активации – ⁶⁰Co, ¹⁵²Eu.

3.1. Факторы, влияющие на формирование доз от внешних источников ионизирующего излучения

В формировании доз от внешних ИИИ участвуют [3]:

- природные радионуклиды в почве и в скальных породах;
- природные дочерние продукты распада природного радона в атмосфере;
- радионуклиды искусственного происхождения в почве и в скальных породах.

Основное влияние на формирование дозы от внешних источников излучения оказывает гамма- и

бета-излучающие радионуклиды. В условиях работ на штольнях площадки «Дегелен» все перечисленные радионуклиды будут вносить вклад в формирование дозы от внешнего облучения, но основное влияние (учитывая энергию испускаемых гамма и бета квантов, а также ожидаемую остаточную активность с учетом периода полураспада) будут оказывать ⁹⁰Sr, ⁹⁰Y, ¹³⁷Cs, ^{137m}Ba.

3.2. Факторы, влияющие на формирование доз при внутреннем облучении

Внутреннее облучение, особенно от альфа- и бета-излучающих радионуклидов, представляет гораздо большую биологическую опасность, чем при внешнем. Оно формируется за счет поступления радионуклидов в организм и последующего их удержания в органах и тканях в течение периода, обусловленного способностью данного радионуклида удерживаться в организме и выводиться из него [4]. Так, например, период полувыведения ¹³⁷Cs составляет около 70 суток, ²⁴¹Am – около 50 лет, трития из свободной воды организма – порядка 10 суток [5].

Специфика проведения работ на штольнях (радиационно-опасном объекте) с учетом соблюдения мероприятий по обеспечению радиационной безопасности исключает поступление радионуклидов пероральным путем поэтому, в данных условиях, основным путем формирования дозы внутреннего облучения является ингаляционное поступление радионуклидов.

Механизм формирования дозы внутреннего облучения будет зависеть от концентраций данных радионуклидов в воздухе и от используемых средств защиты органов дыхания. Однако учитывая дозовые коэффициенты для всех основных радионуклидов, загрязнение которыми возможно в данных условиях (по результатам расчетов на основе исходных данных), при равных объемных активностях в воздухе, можно предположить, что основное влияние на дозу окажут изотопы Pu, ²⁴¹Am и ⁹⁰Sr. Так же при расчетах доз от ингаляционного поступления необходимо учитывать влияние трития, радона и продуктов его распада.

4. МЕТОДОЛОГИЯ РАСЧЕТА ДОЗ

В связи с тем, что делящихся ядерных материалов на штольнях в значимых количествах не выявлено, нейтронное облучение в расчете доз не учитывалось.

Общая суммарная эффективная доза (в условиях работ на штольнях площадки «Дегелен») определена как сумма следующих составляющих [6]:

$$E = E_{\gamma} + E_{\beta} + \sum E_{ДПР} + \sum E_{i(инг)}, \quad (1)$$

где E_{γ} - доза внешнего γ -излучения; E_{β} - доза внешнего β -излучения; $E_{i(инг)}$ - ожидаемая доза от поступления в организм i -го радионуклида через органы дыхания (кроме дочерних продуктов распада радона и торона); $E_{ДПР}$ - доза от поступления в организм дочерних продуктов распада радона и торона.

При расчете доз использовался консервативный подход. Расчет доз проводился на период проведения работ и на год.

4.1. Методология расчета доз от внешних источников ионизирующего излучения

Доза от внешних источников ионизирующего излучения (ИИИ) определялась как сумма доз внешнего γ - и β -излучения.

Расчет доз от внешних источников γ -излучения проводился по результатам измерений мощности эквивалентной дозы (МЭД) на месте ведения работ и в полевом лагере с учетом времени нахождения [6]:

$$E_{\gamma} = P_{\gamma} \cdot t \cdot K_{ин}, \quad (2)$$

где P_{γ} - измеренная мощность эквивалентной дозы гамма-излучения на рабочем месте и в жилом лагере; t - время облучения (7,2 часа – время ежедневной работы, 16,8 часов – время ежедневного отдыха); $K_{ин}$ - поправка на ослабление гамма-излучения в теле человека, учитывающая неравномерность облучения различных органов (для расчетов принималось за 1).

Расчет эффективных доз от внешних источников β -излучения проводился по результатам измерений плотности потока β -частиц на месте ведения работ и в полевом лагере с учетом времени нахождения [6]:

$$E_{\beta} = H_{\beta} \cdot W_t \cdot K_o, \quad (3)$$

где $H_{\beta} = P_{\beta} \cdot t_{обл}$ - эквивалентная доза бета излучения; P_{β} - мощности эквивалентной дозы бета-излучения на рабочем месте и в жилом лагере; $t_{обл}$ - время облучения (7,2 часа – время ежедневной работы, 16,8 часов – время ежедневного отдыха); $W_t = 0,01$ - взвешивающий коэффициент для кожи; $K_o = 0,5$ - коэффициент ослабления бета - излучения одеждой. Расчет мощностей эквивалентной дозы бета-излучения ведётся по формуле:

$$P_{\beta i} = \sum N_{\beta Ei} \cdot e_{\beta Ei} \cdot \exp(-\mu_B \cdot d), \quad (4)$$

где $N_{\beta Ei}$ - плотность потока бета-частиц с E_i средней энергией, бета-частиц/см²·с; $\exp(-\mu_B \cdot d)$ - поправка на ослабление бета-частиц в воздухе (для расчетов принималось за 0,9); $e_{\beta Ei}$ - эквивалентная на единичный флюенс бета-частиц E_i средней энергии доза из таблицы 8.4 НРБ-99 [7], Зв·см²/част.

Из рассматриваемых радионуклидов наибольшей энергией обладают β -частицы испускаемые ⁹⁰Y (2,28 МэВ). С учетом консервативного подхода, для определения эквивалентной дозы на единичный флюенс, при расчете доз от внешних источников β -излучения, предполагалось что все β -частицы обладают энергией 2,28 МэВ.

4.2. Методология расчета доз вследствие ингаляционного поступления радионуклидов

Определение дозы от внутреннего поступления радионуклидов для персонала осуществляется при условии их попадания внутрь организма ингаляционным путем. Расчет дозы от внутреннего поступления техногенных радионуклидов определяется расчетно-аналитическим способом с учетом данных, полученных в результате лабораторных исследований проб воздушных аэрозолей и водяных паров, измерений эквивалентной равновесной объемной активности ²²²Rn и ²²⁰Rn и справочных материалов по дозовым коэффициентам и годового объема вдыхаемого воздуха для условного человека [8].

Ожидаемая эффективная доза от поступления радионуклидов ингаляционным путём (через органы дыхания) определяется по формуле:

$$E_{i(инг)} = (C_{i(рм)} \cdot V_{перс} + C_{i(атм)} \cdot (V_{нас} - V_{перс})) \cdot e_{(инг)i}, \quad (5)$$

где $C_{i(атм)}$ - концентрация i -го изотопа в атмосфере жилой зоны, м³; $C_{i(рм)}$ - концентрация i -го изотопа в воздухе на рабочем месте, м³; $V_{перс}$ - объем вдыхаемого воздуха персонала на рабочем месте (1,41 м³ в час, 10,16 м³ – за время ежедневной работы [7]); $V_{нас}$ - объем вдыхаемого воздуха населения в атмосфере жилой зоны (1,41 м³ в час, 23,7 м³ – за время ежедневного отдыха [7]); $e_{(инг)i}$ - дозовый коэффициент i -го изотопа при поступлении его ингаляционным путём, указанный в НРБ-99 в таблице П1 для персонала и в таблице П2 для населения, Зв/Бк [7].

Эффективная доза от поступления в организм радона и продуктов его распада $E_{ДПР}$ определяется по формуле [6]:

$$E_{ДПР(перс)} = g_{ДПР(перс)} \cdot \left(\frac{V_n \cdot C_{рм} + (V_n - V_n) \times}{\times (C_{атм} \cdot 0,2 + C_{жп} \cdot 0,8)} \right), \quad (6)$$

где $g_{ДПР(перс)} = 6,6 \cdot 10^{-9}$ Зв/Бк – условный дозовый коэффициент по ²²²Rn для персонала рассчитанный на основе предела годового поступления для персонала; $C_{жп}$, $C_{атм}$, $C_{рм}$ - эквивалентная равновесная объёмная активность ²²²Rn в жилых помещениях, атмосфере и на рабочем месте соответственно; 0,2; 0,8 - доли времени пребывания на улице и в помещениях соответственно.

Эффективная доза от поступления ДПР ²²⁰Rn рассчитывается по формуле 6 с условным дозовым коэффициентом по ²²⁰Rn для персонала $g_{ДПР(перс)} = 3 \cdot 10^{-8}$ Зв/Бк.

Расчет доз от внутреннего ингаляционного поступления радионуклидов проводился без учета защиты органов дыхания. При расчете доз, учитывая консервативный подход, значения объёмных активностей по результатам измерений находящиеся ниже предела обнаружения приравнивались к пределу обнаружения используемых средств измерений.

5. ОЦЕНКА ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПЕРСОНАЛА РАСЧЕТНЫМ МЕТОДОМ ПО ДАННЫМ ИЗМЕРЕНИЯ РАДИАЦИОННЫХ ПАРАМЕТРОВ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ИНЖЕНЕРНОЙ ЗАЩИТЫ

5.1 Дозы от внешних источников ионизирующего излучения

Работы по созданию дополнительной защиты проводились вахтовым методом. Количество дней в вахте варьировалось (максимальное количество дней в вахте достигало 25 дней). Расчет доз от внешних ИИИ проводился для каждой вахты по максимальным значениям радиационных параметров, зафиксированных за вахту в рабочей и жилой зонах, с учетом характера изменения радиационной обстановки, времени работы и отдыха. При незначительных изменениях радиационных параметров расчет доз за вахту проводился по максимальным значениям за период вахты (консервативная оценка). В случае резких изменений радиационных параметров за период вахты при расчете отдельно учитывались дни работы с повышенными значениями радиационных параметров. Доза за период работ рассчитывалась как сумма доз за вахты. Оценка доз за год проводилась по дозам за период работ из предположения, что работы в течение года проводились при тех же условиях что и за период работ. Результаты расчета доз от внешних ИИИ представлены в таблице и на рисунке 5 (таблица 2).

Таблица 2. Расчет доз от внешних источников излучения

Обозначение штольни	Длительность работ, дней	Суммарная доза от внешних ИИИ за период работ, мЗв	Доза от внешнего γ -излучения за год, мЗв/год	Доза от внешнего β -излучения за год, мЗв/год	Суммарная доза от внешних ИИИ за год, мЗв/год
Г1	140	3,2	8,06	0,27	8,3
Г2	149	0,9	2,27	0,02	2,3
Г3	160	1,2	2,65	0,02	2,7
Г4	105	2,4	7,76	0,75	8,5
В1	80	0,4	1,62	0,01	1,6
В2	86	0,5	1,94	0,01	2,0
В3	72	0,3	1,33	0,01	1,3
В4	95	0,5	2,02	0,02	2,0
В5	42	0,2	1,44	0,01	1,5

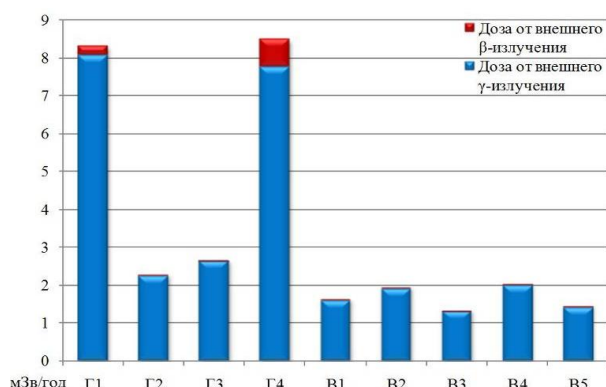


Рисунок 5. Расчет доз от внешних источников излучения

По результатам расчетов годовых доз видно, что максимальные дозы от внешних ИИИ могли быть получены при проведении работ горизонтальным методом.

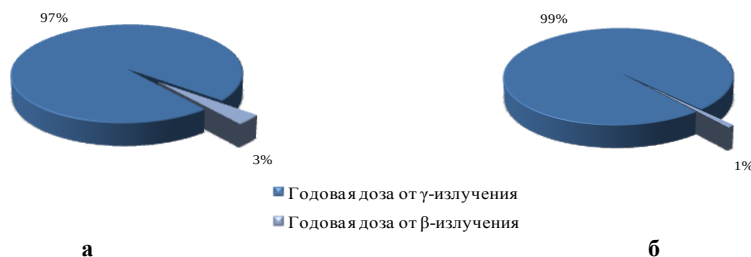
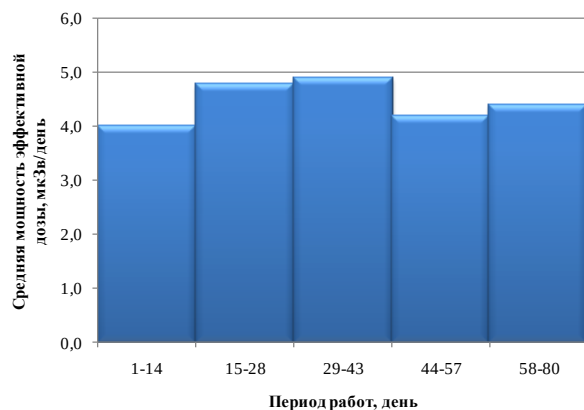


Рисунок 6. Усредненный вклад в дозу от внешнего гамма- и бета-излучения, (а) на штольнях с горизонтальным методом создания защиты, (б) на штольнях с вертикальным методом создания защиты

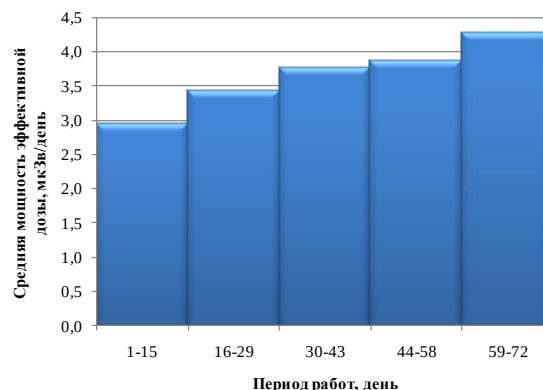
**ФОРМИРОВАНИЕ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ
ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ НА ШТОЛЬНЫХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»**

Таблица 3. Вклад в дозу от внешнего гамма- и бета-излучения, %

	Г1	Г2	Г3	Г4	В1	В2	В3	В4	В5
Вклад в дозу от внешнего гамма-излучения	97	99	99	91	99	99	99	99	99
Вклад в дозу от внешнего бета-излучения	3	1	1	9	1	1	1	1	1

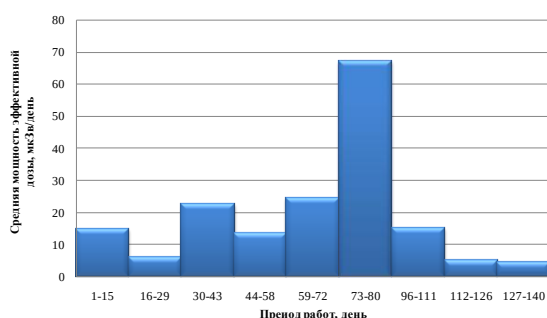


а

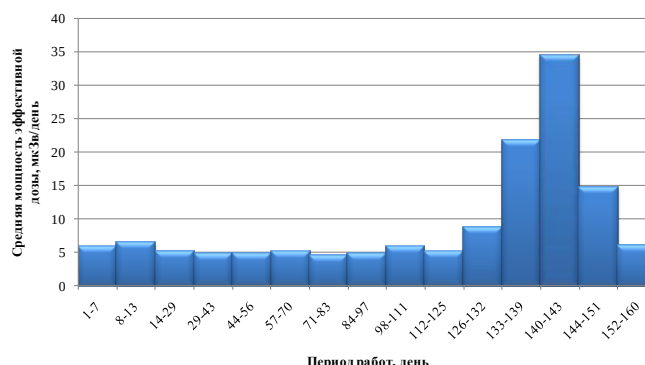


б

Рисунок 7. Формирования доз от внешних ИИИ на штольнях с вертикальным методом проведения работ, (а) штольня В1, (б) штольня В3



а



б

Рисунок 8. Формирования доз от внешних ИИИ на штольнях с горизонтальным методом проведения работ, (а) штольня Г1, (б) штольня Г3

5.2 Дозы при внутреннем облучении радионуклидами

5.2.1. Расчет доз при внутреннем облучении ^{241}Am , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , $^{137\text{m}}\text{Ba}$, ^3H , ^{222}Rn и ^{220}Rn

Расчет доз вследствие ингаляционного поступления радионуклидов проводился по измеренным значениям ^{241}Am , ^{137}Cs , $^{137\text{m}}\text{Ba}$, ^3H , ^{222}Rn и ^{220}Rn . Расчет доз вследствие ингаляционного поступления $^{239+240}\text{Pu}$ проводился как на основе измеренных значений, так и на основе расчетных данных по вычисленному соотношению для каждой штольни $^{239+240}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$. Расчет доз вследствие ингаляционного поступления радионуклидов проводился аналогично расчету от внешних ИИИ. Расчет проводился для каждой вахты по максимальным значениям радиационных параметров зафиксированных за вахту в рабочей и жилой зонах, с учетом характера изменения радиационной обстановки и времени работы и отдыха. При незначительных изменениях радиационных параметров рас-

чет доз за вахту проводился по максимальным значениям за период вахты (консервативная оценка). В случае резких изменений радиационных параметров за период вахты при расчете отдельно учитывались дни работы с повышенными значениями радиационных параметров. Доза за период работ рассчитывалась как сумма доз за вахты. Оценка доз за год проводилась по дозам за период работ из предположения, что работы в течение года проводились при тех же условиях что и за период работ. Результаты расчета доз представлены в таблице 4.

Анализ вклада различных радионуклидов в формирование дозы показывает, что основное влияние на дозу оказывают, ^{222}Rn , ^{220}Rn , $^{239+240}\text{Pu}$ и ^{241}Am (таблица 5).

Проведен расчет усредненного вклада различных радионуклидов в формирование дозы для штолен с горизонтальным и вертикальным методами проведения работ (рисунок 9).

**ФОРМИРОВАНИЕ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ ДОЗ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СОЗДАНИЮ
ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ЗАЩИТЫ ИНЖЕНЕРНЫХ СООРУЖЕНИЙ НА ШТОЛЬНЫХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН»**

Таблица 4. Результаты расчета доз от ингаляционного поступления радионуклидов

Условное обозначение штольни	Длительность работ, дней	Суммарная доза от ингаляционного поступления за период работ, мЗв	Суммарная доза от ингаляционного поступления за год, мЗв/год
Г1	140	13,9	36
Г2	149	4,0	10
Г3	157	19,4	44
Г4	104	4,0	14
В1	80	1,0	4
В2	86	1,4	6
В3	72	1,3	7
В4	95	1,1	4
В5	42	0,6	5

Таблица 5. Вклад радионуклидов в формирование дозы для различных штолен, %

	Г1	Г2	Г3	Г4	В1	В2	В3	В4	В5
ДПР радона	67	94	96	36	87	65	92	92	73
^3H	0,007	0,012	0,002	0,003	0,05	0,007	0,002	0,006	0,001
$^{137}\text{Cs} + ^{137\text{m}}\text{Ba}$	0,0003	0,0009	0,002	0,02	0,002	0,008	0,0004	0,0002	0,002
^{241}Am	12	2	1	22	5	12	3	3	9
$^{239+240}\text{Pu}$	22	4	3	42	9	23	5	5	17

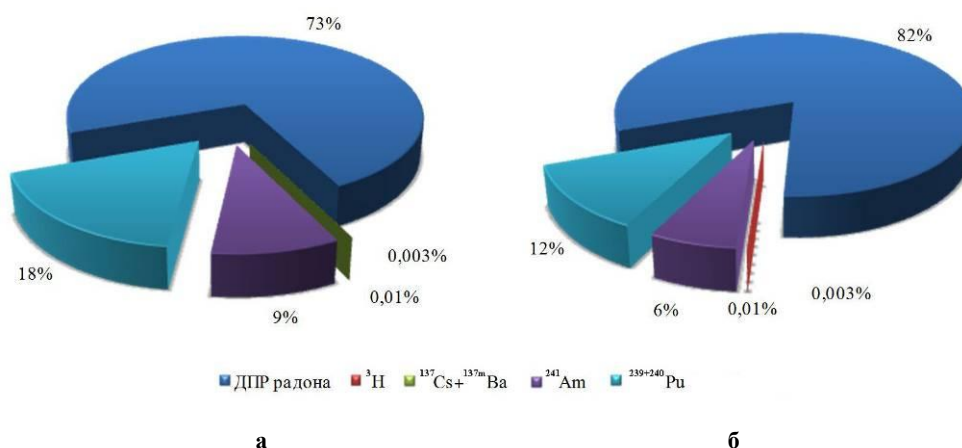


Рисунок 9. Усредненный вклад различных радионуклидов в формирование дозы, (а) на штольнях с горизонтальным методом создания защиты, (б) на штольнях с вертикальным методом создания защиты

Анализ усредненного вклада различных радионуклидов показал, что для штолен с разными методами проведения работ по созданию дополнительной инженерной защиты, механизм формирования доз схож.

5.2.2. Оценка индивидуальных доз персонала вследствие поступления ^{241}Pu

Предполагая, что соотношение $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ будет неизменно для почвы и воздушных аэрозолей для одного объекта исследования, можно оценить дозу от поступления ^{241}Pu по результатам измерения удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$.

По результатам исследовательских работ проведенных в ИРБЭ НЯЦ РК, известно, что соотношение $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ для различных штолен варьируется от 1,7 до 130, следовательно, применять унифицированный коэффициент пересчета удельной активности ^{241}Pu по данным удельной активности $^{239+240}\text{Pu}$ нельзя. Однако для оценки возможного вклада в

формирование доз вследствие поступления ^{241}Pu был проведен расчет доз для всех рассматриваемых штолен по известному соотношению $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (3,5) определенному для штольни В1. Полученные значения доз от поступления ^{241}Pu и их сравнительный анализ с дозами, полученными вследствие поступления ^{241}Am , представлены на гистограмме (рисунок 10).

По результатам сравнения полученных доз от внутреннего поступления ^{241}Pu и ^{241}Am можно сделать вывод, что даже при относительно небольших значениях соотношения $^{241}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ (3,5), дозы от ^{241}Pu сравнимы с дозами от ^{241}Am . В случае же повышения значений данного соотношения до максимально зафиксированного на данный момент на площадке «Дегелен» (130) дозы от внутреннего поступления ^{241}Pu будут значительно превышать дозы полученные при поступлении ^{241}Am .

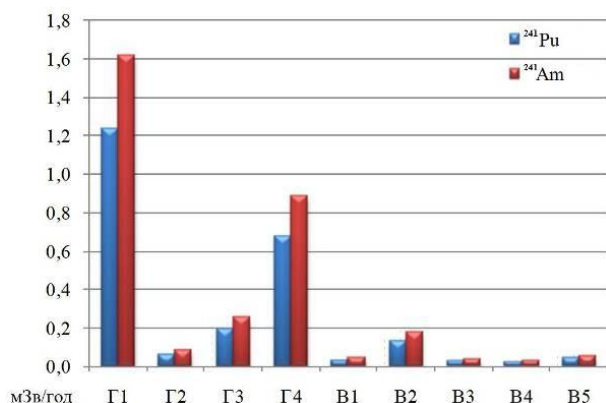


Рисунок 10. Вклад в формирование дозы для различных штолен вследствие внутреннего поступления ^{241}Pu и ^{241}Am

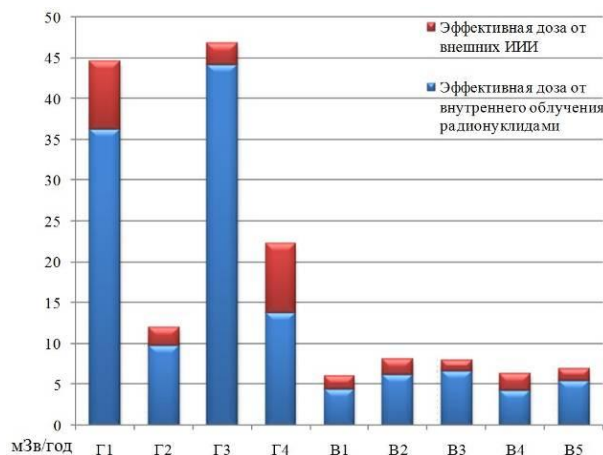


Рисунок 11. Расчет суммарных эффективных доз

5.2.3. Оценка вклада в индивидуальные дозы персонала вследствие поступления других изотопов

Для оценки вклада в формирование доз от внутреннего поступления радионуклидов, загрязнение которыми возможно на территории штолен и прилегающих участков в значимых концентрациях, но измерение объемных активностей в воздухе которых не проводилось ($^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, $^{121}\text{Sn-m}$, ^{151}Sm , ^{155}Eu , ^{99}Tc , ^{238}Pu , ^{242}Pu), на основе исходных данных об испытаниях на штольных было определено их соотношение на настоящий момент и радионуклидов, о которых имеются данные об объемной активности в воздухе во время проведения работ (^{241}Am и $^{137}\text{Cs}+^{137m}\text{Ba}$). По данным соотношениям был проведен расчет возможных объемных активностей $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, $^{121}\text{Sn-m}$, ^{151}Sm , ^{155}Eu , ^{99}Tc , ^{238}Pu , ^{242}Pu . Расчет активности радионуклидов в воздухе проводился по максимальным измеренным значениям объемной активности в воздухе ^{241}Am и ^{137}Cs для каждой штольни. Расчет доз проводился с учетом консервативного подхода, по максимально возможным кон-

центрациям при постоянном поступлении радионуклидов в течение года.

Результаты расчета годовых доз представлены в таблицах 6, 7.

Результаты расчетов показали, что наибольшее влияние на формирование дозы при внутреннем поступлении оказывают следующие радионуклиды - $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ и ^{238}Pu . Максимальные значения годовых доз при постоянном поступлении радионуклидов составили $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ – 0,3 мЗв/год, ^{238}Pu – 20 мЗв/год (при тех же условиях доза от поступления ^{241}Am составит 25 мЗв/год, от $^{137}\text{Cs}+^{137m}\text{Ba}$ – $4 \cdot 10^{-4}$ мЗв/год).

Таким образом, нельзя пренебрегать вкладом ^{238}Pu так как его вклад в формирование дозы сопоставим с вкладом от ^{241}Am .

Суммарный вклад в дозу от внутреннего поступления $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$, $^{121}\text{Sn-m}$, ^{151}Sm , ^{155}Eu , ^{99}Tc по консервативной оценке не превышает 0,5 мЗв/год, при этом 99% этой дозы сформировано поступлением $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$.

Таблица 6. Расчетные значения доз на основе измеренных значений $^{137}\text{Cs}+^{137m}\text{Ba}$, мЗв/год

	Г1	Г2	Г3	Г4	В1	В2	В3	В4	В5
$^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-1}$	$3 \cdot 10^{-1}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-3}$
^{99}Tc	$1 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-6}$	$5 \cdot 10^{-6}$
^{155}Eu	$5 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-7}$	$5 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$
^{121m}Sn	$3 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-7}$
^{151}Sm	$5 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-5}$
Суммарная доза	$8 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-1}$	$3 \cdot 10^{-1}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-3}$

Таблица 7. Расчетные значения доз на основе измеренных значений ^{241}Am , мЗв/год

	Г1	Г2	Г3	Г4	В1	В2	В3	В4	В5
^{242}Pu	$2 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-4}$
^{238}Pu	$2 \cdot 10^1$	$1 \cdot 10^0$	$1 \cdot 10^0$	$7 \cdot 10^0$	$2 \cdot 10^{-1}$	$1 \cdot 10^0$	$1 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-1}$	$7 \cdot 10^{-1}$
Суммарная доза	$2 \cdot 10^1$	$1 \cdot 10^0$	$1 \cdot 10^0$	$7 \cdot 10^0$	$2 \cdot 10^{-1}$	$1 \cdot 10^0$	$1 \cdot 10^{-1}$	$5 \cdot 10^{-1}$	$7 \cdot 10^{-1}$

6. ОЖИДАЕМЫЕ СУММАРНЫЕ ЭФФЕКТИВНЫЕ ДОЗЫ

Расчет суммарных эффективных доз за период работ и за год представлен в таблице 8 (рисунок 11).

Расчет эффективных доз для работ по сооружению дополнительной инженерной защиты показал, что годовые дозы, которые могут быть получены как при проведении работ горизонтальным методом, значительно превышают дозы, полученные при проведении работ вертикальным методом. Проведения работ (в условиях аналогичных штольне Г1 и Г2), без использования средств индивидуальной защиты органов дыхания, в течение 3 лет может привести к переоблучению персонала (132-138 мЗв за 3 года при допустимых 100 мЗв за любые последовательные 5 лет).

Проведен расчет усредненного вклада в формирование доз от внешних ИИИ и внутреннего поступления радионуклидов для штолен с горизонтальным и вертикальным методами проведения работ (рисунок 12, таблица 9).

По результатам расчета вклада в формирование доз от внешних ИИИ и внутреннего поступления радио-

нуклидов можно сделать вывод, что как при горизонтальном методе создания дополнительной защиты, так и при вертикальном основное формирование доз происходит за счет внутреннего поступления.

Работы по сооружению дополнительной инженерной защиты на штольных площадке «Дегелен» проводятся с обязательным использованием средств индивидуальной защиты органов дыхания. Проведен расчет суммарной эффективной годовой дозы допуская, что минимальная кратность ослабления предельно допустимой концентрации используемых средств индивидуальной защиты равна 10 (таблица 10).

По результатам расчета суммарной эффективной годовой дозы, с учетом использования средств индивидуальной защиты органов дыхания, можно сделать вывод, что максимальные дозы, которые возможно было получить при проведении работ по созданию дополнительной защиты инженерных сооружений на рассматриваемых штольнях не превысили допустимых значений доз для персонала категории А (20 мЗв/год).

Таблица 8. Расчет суммарных эффективных доз

Условное обозначение штольни	Суммарная доза от ингаляционного поступления за период работ, мЗв	Суммарная доза от ингаляционного поступления за год, мЗв/год	Суммарная доза от внешних ИИИ за период работ, мЗв	Суммарная доза от внешних ИИИ за год, мЗв/год	Суммарная эффективная доза за период работ, мЗв	Суммарная эффективная доза за год, мЗв/год
Г1	13,9	36	3,2	8,3	17,1	44,3
Г2	4	10	0,9	2,3	4,9	12,3
Г3	19,4	44	1,2	2,7	20,6	46,7
Г4	4	14	2,4	8,5	6,4	22,5
В1	1	4	0,4	1,6	1,4	5,6
В2	1,4	6	0,5	2	1,9	8,0
В3	1,3	7	0,3	1,3	1,6	8,3
В4	1,1	4	0,5	2	1,6	6,0
В5	0,6	5	0,2	1,5	0,8	6,5

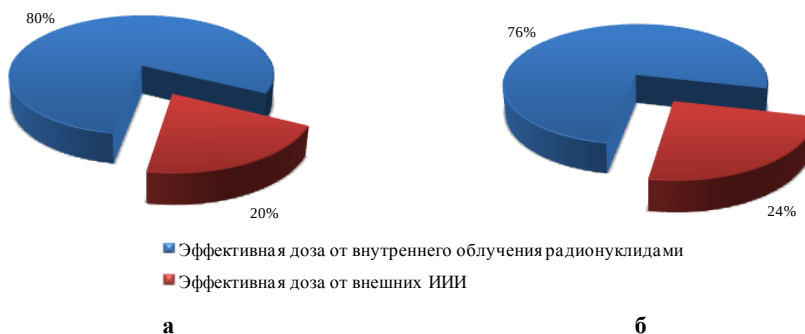


Рисунок 12. Усредненный вклад в формирование доз от внешних ИИИ и внутреннего поступления радионуклидов, (а) на штольнях с горизонтальным методом создания защиты, (б) на штольнях с вертикальным методом создания защиты

Таблица 9. Вклад в формирование доз от внешних ИИИ и внутреннего поступления радионуклидов, %

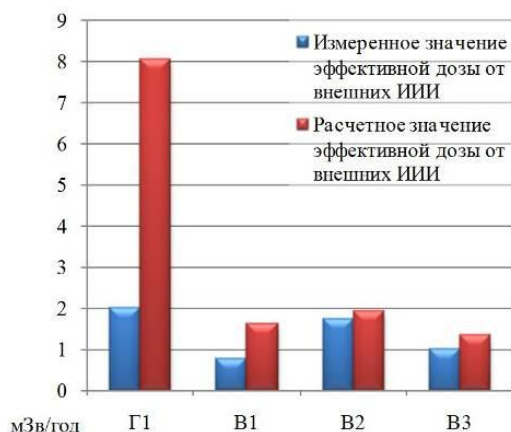
	Г1	Г2	Г3	Г4	В1	В2	В3	В4	В5
Вклад в дозу от внешнего гамма-излучения	81	81	94	62	73	76	83	68	79
Вклад в дозу от внешнего бета-излучения	19	19	6	38	27	24	17	32	21

*Таблица 10. Расчет суммарных эффективных доз с учетом использования
средств индивидуальной защиты органов дыхания, мЗв/год*

Условное обозначение штольни	Суммарная доза от ингаляционного поступления	Суммарная доза от внешних ИИИ	Суммарная эффектив- ная доза
Г1	3,6	8,3	11,9
Г2	1	2,3	3,3
Г3	4,4	2,7	7,1
Г4	1,4	8,5	9,9
В1	0,4	1,6	2
В2	0,6	2	2,6
В3	0,7	1,3	2
В4	0,4	2	2,4
В5	0,5	1,5	2

7. СРАВНЕНИЕ ИЗМЕРЕННЫХ ДОЗ ОТ ВНЕШНИХ ИИИ С РАСЧЕТНЫМИ ДОЗАМИ

Расчетные значения доз от внешних ИИИ были сравнены с измеренными значениями доз от внешних ИИИ для некоторых штолен. Измерение доз проводилось с использованием термолюминесцентных дозиметров. Результаты сравнения представлены на гистограмме (рисунок 13).



*Рисунок 13. Сравнение измеренных доз
от внешних ИИИ с расчетными дозами*

Из гистограммы видно, что расчетные значения доз от внешних источников ИИИ при вертикальном методе создания защиты в большинстве случаев практически совпадают с измеренными значениями, тогда как измеренное значение при горизонтальном методе создания защиты в 4 раза меньше расчетного значения. Данный факт объясняется характером изменения радиационной обстановки на месте ведения работ при различных методах создания защиты:

- при вертикальном методе создания защиты изменение радиационной обстановки носит равномерный характер, значения радиационных параметров, влияющих на формирование доз от внешних ИИИ, практически не изменяются во времени.
- при горизонтальном методе создания защиты изменение радиационной обстановки носит неравномерный характер, значения радиационных параметров изменяются во времени в диапазоне до 2 порядков.

Так как расчет доз проводился с использованием консервативного подхода, т.е. предполагая, что человек постоянно находится в месте с максимальными значениями радиационных параметров, учитывая характер изменения радиационной обстановки, расчетное значение доз от внешних ИИИ при горизонтальном методе создания защиты будет значительно превышать измеренные значения доз, тогда как при вертикальном методе создания защиты расчетные значения доз будут сопоставимы с измеренными.

Выводы

1. При оценке доз от внешних ИИИ необходимо учитывать вклад от внешнего бета-излучения при работах на штольнях с горизонтальным методом создания защиты.

2. При создании защиты горизонтальным методом основная доза от внешних ИИИ формируется во время проведения заключительного этапа работ, связанного непосредственно с сооружением дополнительной защиты и характеризующегося повышенной радиационной опасностью.

3. Механизм формирования доз от внутреннего поступления радионуклидов одинаков как для горизонтального метода создания дополнительной защиты, так и для вертикального.

4. При оценке доз от внутреннего поступления радионуклидов влиянием ^{137}Cs , $^{137\text{m}}\text{Ba}$ и ^3H на дозу можно пренебречь, так как их вклад не превышает 0,01% от общей дозы.

5. Наибольшее влияние на дозу от ингаляционного поступления радионуклидов оказывают естественные радионуклиды ^{222}Rn и ^{220}Rn . Однако не следует пренебрегать влиянием на формирование доз при ингаляционном поступлении техногенных радионуклидов, таких как ^{241}Am и $^{239+240}\text{Pu}$.

6. Наиболее оперативным и экономически выгодным способом оценки доз при внутреннем поступлении $^{239+240}\text{Pu}$ является расчетный метод по измеренным значениям объемной активности ^{241}Am в воздухе.

7. При проведении работ по созданию дополнительной инженерной защиты необходимо учитывать вклад от ^{241}Pu . Вклад от ^{241}Pu можно учитывать расчетным путем по измеренным значениям ^{241}Am , для этого необходимо при предварительном обследо-

нии провести измерения ^{241}Pu в пробах почвы для расчета соотношения $^{241}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$.

8. Для более точной оценки доз от внутреннего облучения необходимо понизить предел обнаружения ^{241}Am (путем повышения времени аспирации, изменением подготовки проб или измерением всех фильтров по окончании работ с вычислением средней объемной активности за весь период работ).

9. При оценке доз от внутреннего поступления радионуклидов необходимо учитывать вклад ^{238}Pu так как его вклад в дозу значителен. Вклад в дозу от ^{238}Pu можно учитывать расчетным путем по измеренным значениям ^{241}Am , для этого необходимо при предварительном обследовании провести измерения ^{238}Pu в пробах почвы для расчета соотношения $^{238}\text{Pu}/^{241}\text{Am}$.

10. Для исключения систематической ошибки при оценке доз нужно учитывать вклад от внутреннего поступления $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$.

РЕКОМЕНДАЦИИ ПО ОПТИМИЗАЦИИ ОБЕСПЕЧЕНИЯ РАДИАЦИОННОЙ БЕЗОПАСНОСТИ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ РАБОТ ПО СООРУЖЕНИЮ ДОПОЛНИТЕЛЬНОЙ ИНЖЕНЕРНОЙ ЗАЩИТЫ НА ШТОЛЬНЫХ ПЛОЩАДКИ «ДЕГЕЛЕН» В ЦЕЛЯХ ПРЕДОТВРАЩЕНИЯ ПЕРЕОБЛУЧЕНИЯ ПЕРСОНАЛА

1. Снизить частоту отбора образцов для оценки доз от внутреннего поступления радионуклидов $^{137}\text{Cs}+^{137\text{m}}\text{Ba}$ и ^3H до 1 раза в неделю.

ЛИТЕРАТУРА

1. Оценка профессионального облучения от внешних источников ионизирующего излучения. Руководство по безопасности. Серия норм безопасности, №RS-G-1.3. – Вена: МАГАТЭ, 1999. – 102с.
2. Машкович, В.П. Защита от ионизирующих излучений: справочник /В.П. Машкович. - М.: Энергоатомиздат, 1982.
3. МУ 2.6.1.1088-2. Методические указания. Оценка индивидуальных эффективных доз облучения населения за счет природных источников ионизирующего излучения: утв. Министра здравоохранения Российской Федерации, 2002.
4. Оценка профессионального облучения вследствие поступления радионуклидов. Руководство по безопасности. Серия норм безопасности, №RS-G-1.2. - Вена: МАГАТЭ, 1999. - 97с.
5. Вредные химические вещества. Радиоактивные вещества: справочник /под.ред. Л.А.Ильина. - Л.: Химия, 1990. - 225 с.
6. Методические указания. Определение эффективной дозы ионизирующего излучения на персонал и население. – Алматы, 2005. - 14 с.
7. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99): СП 2.6.1. 758-99; ввод. в действие 01.01.2000. – Алматы: Агентство по делам Здравоохранения РК, 1999. - 80с. – ISBN 9965-501-42-4.
8. Гусев, Н.Г. Радиоактивные выбросы в биосфере: справочник / Н.Г. Гусев, В.А. Беляев. – М.: Энергоатомиздат, 1986.

**«ДЕГЕЛЕН» АЛАҢЫ ШТОЛЬНЯЛАРЫНДАҒЫ ИНЖЕНЕРЛІК ҚҰРЫЛЫСТАРДЫҢ ҚОСЫМША
ҚОРҒАУЫН ҚҰРУ БОЙЫНША ЖҰМЫСТАРДЫ ЖҮРГІЗУ КЕЗІНДЕГІ ЖЕКЕ ДОЗАНЫ
ҚАЛЫПТАСТЫРУ**

Мустафина Е.В., Лукашенко С.Н., Осинцев А.Ю., Брянцева Н.В.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Қазақстан, Құрчатов

Мақалада «Дегелен» алаңы штольняларындағы инженерлік құрылыстардың қосымша қорғауын құру бойынша жұмыстарды жүргізу кезіндегі қызметкердің жеке дозасын есептеу нәтижесі ұсынылған. Жұмыстарды жүргізу кезіндегі жеке дозаны қалыптастыруға әсер ететін негізгі факторлар анықталып, қызметкерге иондық сәулеленудің сыртқы көздерінен дозалық жүктемесі және радионуклидтердің ингаляциялық түсуінің салдары есептелген, қосымша инженерлік қорғау құрылысы бойынша жұмыстарды жүргізу кезіндегі радиациялық қауіпсіздікті қамтамасыз етуді оңтайландыру бойынша ұсыныстар әзірленген.

**FORMATION OF INDIVIDUAL DOSES WHEN MAKING SUPPLEMENTARY PROTECTION FOR
ENGINEERING STRUCTURES ON TUNNELS ON "DEGELEN" TEST SITE**

E.V. Mustafina, S.N. Lukashenko, A. Yu. Osintsev, N.V. Bryantseva

Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article presents calculation results of individual doses of staff during the creation of supplementary protection for engineering structures of tunnels on "Degelen" test site. The main factors have been determined that influence on the formation of individual doses in the works for the construction of additional engineering protection, we have calculated the dose of personnel from external sources of ionizing radiation and as a result of inhalation intake of radionuclides, and there were developed recommendations for optimization of radiation safety when working on the construction of additional engineering protection.

УДК 577.4:504.75.05:539.16

УТИЛИЗАЦИЯ ИСТОЧНИКОВ РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ НА ТЕРРИТОРИИ БЫВШЕГО ВОЕННОГО АРСЕНАЛА В п. ТОКРАЗ

Дмитропавленко В.Н., Осинцев А.Ю., Коровина О.Ю., Мустафина Е.В.

Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В 2001 г. на военной базе "Арсенал", расположенной в Актогайском районе Карагандинской области, произошел пожар, вследствие которого пострадали склады с боеприпасами. После пожара в двух сооружениях арсенала были обнаружены источники повышенной радиационной опасности. В 2006 г. было принято решение о проведении ликвидационно-консервационных работ, включающих утилизацию образовавшихся радиоактивных отходов и их захоронение. Данные работы были проведены Национальным ядерным центром РК совместно со специалистами Министерства обороны РК. В результате проведения работ была исключена опасность распространения радиоактивного загрязнения, образовавшегося в результате чрезвычайной ситуации. Все имеющиеся на объекте радиоактивные отходы (РАО) утилизированы и размещены на длительное хранение на комплексе "Байкал". В результате заключительного обследования подтверждена безопасность проведенных работ и отсутствие отрицательного антропогенного воздействия на существующую экосистему. За все время проведения радиационно-опасных работ персонал, выполнявший работы по утилизации источников радиоактивного загрязнения на территории бывшего военного арсенала, не получил дозы радиоактивного облучения, превышающей нормируемые величины.

ВВЕДЕНИЕ

Военная база "Арсенал" территориально находится в Карагандинской области, в Актогайском районе. В географическом отношении база расположена на северном побережье озера Балхаш, на расстоянии менее 10 км от берега.

В 2001 г. на военной базе "Арсенал" произошел пожар, вследствие которого пострадали склады с боеприпасами. Общий боезапас, хранившийся на складах в п. Токраз, по информации министерства обороны РК составлял несколько десятков тысяч тонн. Это снаряды и мины, заложенные на хранение еще советской армией во время войны в Афганистане и частично вывезенные на хранение из Армении после Спитакского землетрясения в 1988 г. Весь боезапас предназначался для дальнейшей утилизации.

После пожара в двух сооружениях арсенала были обнаружены источники повышенной радиационной опасности. Для решения проблемы утилизации источников радиоактивного загрязнения и проведения природоохранных мероприятий на территории сооружений были привлечены специалисты Национального ядерного центра РК. В сентябре 2006 г. специалистами НЯЦ РК и МО РК было проведено совместное радиационное обследование хранилищ № 9 и № 18. В ходе обследования было определено:

- в хранилищах находятся фрагменты от боеприпасов, укупорки боеприпасов различной степени сохранности и фрагментации;
- хранилища № 9 и № 18 представляют собой опасность для окружающей территории, так как часть радиоактивных материалов находится в мелкодисперсном состоянии и легко переносима ветром.

Радиационный фон внутри хранилищ существенно (в сотни раз) превышал естественный радиацион-

ный фон местности. Плотность потока бета-частиц превышала допустимые уровни загрязнения поверхностей, установленные НРБ-99 [1].

По результатам обследования было рекомендовано провести ликвидационно-консервационные работы, включающие утилизацию образовавшихся радиоактивных отходов (РАО) и их захоронение. Данные работы были проведены Национальным ядерным центром РК совместно со специалистами Министерства обороны РК.

1. ХАРАКТЕРИСТИКА ОБЪЕКТОВ

1.1. Общая информация

Хранилища боеприпасов до пожара представляли собой железобетонные сооружения, частично обвалованные землей. В качестве опорных стен и перекрытия использовались железобетонные арки, скрепленные между собой. Пол в хранилище – бетонный. Длина хранилища – 70 м, внутренняя ширина – 12 м, высота – 7 м. На потолке каждого хранилища, с использованием массивных двутавров, были смонтированы пути перемещения электроталей, а также система автоматического пожаротушения. Под воздействием высоких температур двутавр и трубы подачи воды значительно деформировались и местами обрушились (рисунок 1).

Также на обоих хранилищах имело место локальное обрушение арок перекрытия крыши (обвал). При обследовании территории хранилищ были обнаружены наконечники боеприпасов с радиоактивным материалом, а также большое количество снарядов боеприпасов.



Рисунок 1. Потолочные металлические конструкции

1.2. Характер радиоактивного загрязнения

1.2.1. Характер распределения радиационных параметров на территории хранилищ

При проведении радиометрического обследования были измерены следующие радиационные параметры: мощность эквивалентной дозы (МЭД), плотность потока β -частиц, эквивалентная равновесная объемная активность (ЭРОА) дочерних продуктов распада радона и торона внутри хранилищ. Результаты измерений составили:

- МЭД варьирует в диапазоне 0,13-3,2 мкЗв/ч;
- плотность потока β -частиц – от 40 до 4000 част/мин·см²;
- ЭРОА дочерних продуктов распада радона – от 10 до 28 Бк/м³;
- ЭРОА дочерних продуктов распада торона не превысила предела обнаружения используемого оборудования (8 Бк/м³).

Наряду с измерениями внутри хранилищ, было проведено радиометрическое обследование прилегающей к ним территории, которая также подверглась радиоактивному загрязнению. В результате обследования было определено, что загрязнению

подверглись не только сами хранилища, но и прилегающая территория общей площадью более 10 га.

Исходя из полученных результатов, было сделано заключение, что радиационный фон внутри хранилищ по МЭД и плотности потока β -частиц существенно (в сотни раз) превышает естественный радиационный фон местности. Повышенный радиационный фон регистрировался не только на территории хранилищ, но и на прилегающих территориях на расстоянии до 200 м от хранилищ.

Полученные результаты позволили провести классификацию и отнести данный объект к разряду представляющих радиационную опасность как для населения, так и для окружающей среды.

1.2.2. Анализ источников радиоактивного загрязнения

Оценка уровня радиоактивного загрязнения грунта внутри хранилища № 9 не проводилась, так как по результатам предварительного осмотра было установлено, что большая часть хранящихся на данном складе 30 мм наконечников боеприпасов не подверглась горению (окислению). Как следствие, они не могли явиться источником радиоактивного загрязнения грунта продуктами горения (оксидами урана). Радиоактивное загрязнение на данном хранилище обусловлено непосредственно сердечниками 30 мм боеприпасов, хаотично разбросанных по хранилищу как в снаряженном состоянии, так и после их разрыва, вызванного термическим воздействием.

Для оценки уровня радиоактивного загрязнения грунта внутри хранилища № 18 было отобрано и проанализировано 2 образца грунта. Первый образец – остатки продуктов горения 125 мм боеприпаса, содержащегося в транспортном тубусе; второй образец – грунт, содержащий остатки продуктов горения боеприпасов. Результаты гамма-спектрометрического анализа приведены в таблице 1.

Таблица 1. Результаты гамма-спектрометрического анализа

Объект исследования	МЭД, мкЗв/ч	Удельная активность, Бк/кг	
		²³⁸ U	²³⁵ U
Остатки продуктов горения 125 мм боеприпаса, содержащегося в транспортном тубусе	2	$1,7 \cdot 10^5$	$1,7 \cdot 10^3$
Грунт, содержащий остатки продуктов горения боеприпасов	0,5	$4,7 \cdot 10^4$	$3,2 \cdot 10^3$
Фоновая площадка	0,14-0,15	—*	—*

Примечание: * – затруднение идентификации радионуклидов в образцах обусловлено их низким содержанием

Исходя из результатов анализа, было сделано заключение, что остатки продуктов горения 125 мм боеприпасов, находящихся в транспортных тубусах, а также грунт, содержащий эти остатки, могут представлять радиационную опасность для работающего персонала, формируя как внешнюю дозу облучения, так и внутреннюю, при ингаляционном поступлении в организм.

Повышенные дозы облучения обусловлены радионуклидами U. Других естественных и техногенных радионуклидов в значимых концентрациях не обнаружено.

1.2.3. Анализ физико-химических параметров радиоактивного загрязнения

Исследование физических параметров радиоактивных объектов

Для проведения исследований физико-химического состава радиоактивного загрязнения в лабораторию были отправлены образцы сердечников 30 мм и 125 мм снарядов. Масса сердечника 30 мм снаряда составила 235 г, 125 мм снаряда – 4,5 кг.

Образцы представляли собой твердые металлические стержни. Сердечник 125 мм снаряда был черного цвета с фрагментами стальных конструкций (хвостовое оперение, наконечник), длина 470 мм, диаметр средней части 30 мм (рисунок 2). Сердечник 30 мм снаряда – серого цвета со следами окисления по поверхности. Длина снаряда составляла 110 мм, диаметр 30 мм (рисунок 3, 4). Часть образцов имела следы термического воздействия, такие как: изменение структуры материала (образование на поверхности порошкообразного вещества черного цвета), следы окисления на поверхности металла (образовавшийся налет желтого цвета).

В связи с различной структурой материала образцов было определено два типа объектов исследований – металлические стержни и порошкообразное

вещество черного цвета. Порошкообразное вещество имело мелкодисперсную структуру, частицы неразличимы невооруженным глазом, размер частиц – менее 50 мкм.

Оба типа объектов исследований были переданы на гамма-спектрометрический анализ для определения радионуклидного состава. Кроме того, часть порошкообразного вещества была передана на масс-спектрометрический анализ для определения изотопного состава материала.

Проведенные лабораторные анализы сердечника 30 мм снаряда массой 235 г и сердечника 125 мм снаряда массой 4,5 кг показали наличие продуктов распада ^{238}U – $^{234\text{m}}\text{Pa}$ и ^{234}Th , также был обнаружен ^{235}U . Результаты гамма-спектрометрического анализа представлены в таблице 2.

Массовое содержание ^{235}U в исследуемых образцах, по нашим оценкам, составило 0,31% от общего количества урана. Контрольные измерения порошка, собранного с обгоревшего сердечника 125 мм, проведенные в лаборатории Института ядерной физики (г. Алматы), показали тот же радионуклидный состав и практически такую же удельную активность (таблица 3).



Рисунок 2. Образец сердечника 125 мм снаряда



Рисунок 3. Образец 30 мм снаряда



Рисунок 4. Образец сердечника 30 мм снаряда

Таблица 2. Результаты гамма-спектрометрического анализа сердечников 30 мм и 125 мм снарядов

р/н	^{238}U	^{234}Th	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	^{235}U
С, Бк/кг	$(1,5 \pm 0,8) \cdot 10^6$	$(1,5 \pm 0,8) \cdot 10^6$	$(1,5 \pm 0,8) \cdot 10^6$	$(9,5 \pm 3,5) \cdot 10^4$

Таблица 3. Результаты гамма-спектрометрического анализа порошка с 125 мм сердечника

р/н	^{238}U	^{234}Th	^{234}Pa	^{226}Ra	^{235}U	^{223}Ra	^{228}Ac
С, Бк/кг	$(1,5 \pm 0,2) \cdot 10^6$	$(1,5 \pm 0,2) \cdot 10^6$	$(1,5 \pm 0,2) \cdot 10^6$	$< 7,0 \cdot 10^2$	$(1,0 \pm 0,1) \cdot 10^5$	$< 1,0 \cdot 10^3$	$< 1,3 \cdot 10^3$

По результатам гамма-спектрометрического исследования было определено, что в порошке черного цвета и сердечниках содержится смесь изотопов урана (^{235}U , ^{238}U) и дочерние продукты распада ^{238}U (^{234}Pa и ^{234}Th). Удельная активность составляет: по $^{235}\text{U} \sim 10^5$ Бк/кг, по $^{238}\text{U} \sim 1,5 \cdot 10^6$ Бк/кг. Содержание ^{235}U в образцах по массе составляет 0,30%. Эти данные подтверждаются результатами анализа, проведенного масс-спектрометрическим способом, который показал наличие изотопов урана в соотношении радионуклидов урана по массе $^{238}\text{U} - 99,72\%$, $^{235}\text{U} - 0,28\%$.

Из результатов анализа следует, что в образцах находится "обедненный уран", используемый при изготовлении артиллерийских снарядов, так как природное содержание ^{235}U по массе составляет порядка 0,7%.

Исследование химических параметров радиоактивных объектов

В лаборатории Института радиационной безопасности и экологии были проведены предварительные исследования образцов, поступивших с территории хранилищ № 9 и № 18 бывшего военного арсенала в п. Токрау.

Гамма-спектрометрический анализ образцов грунта свидетельствует о наличии в одном образце, отобранном в точке с максимальными радиационными параметрами, незначительного количества ^{238}U и ^{235}U . Содержание техногенного радионуклида ^{137}Cs в исследуемых образцах не превышает 2 Бк/кг, что ниже фоновых значений для территории Казахстана.

После гамма-спектрометрических исследований образцов был проведен химический анализ с целью определения возможного состава исследуемых материалов.

Порошок с обгоревшего сердечника представлял собой рассыпчатое вещество черного цвета, напоминающее внешне активированный уголь. Исследуемое вещество легко поддавалось измельчению и в большей степени представлено мелкой пылевидной фракцией. Для уточнения химического состава данного вещества были изучены следующие свойства:

- растворимость в воде;
- растворимость в кислотах (азотной, плавиковой, серной, соляной).

Для определения растворимости в воде навеска исследуемого вещества помещалась в стакан с дистиллированной водой, тщательно перемешивалась. По прошествии некоторого времени порошок оседал на дне стакана. Видимых изменений замечено не было. Далее образец нагревался в течение 1 часа, видимые изменения отсутствовали. Для подтвержде-

ния факта отсутствия растворения порошка в воде и возможного перехода радионуклидов, содержащихся в порошке, в раствор, осадок отфильтровывался через фильтр "белая лента" и полученный раствор отправлялся на гамма-спектрометрический анализ. Анализ подтвердил визуальные наблюдения. Обнаруженных в порошке радионуклидов (^{235}U , ^{238}U , ^{234}Pa и ^{234}Th) в водной вытяжке не оказалось. Исходя из этого, были сделаны выводы о слабой растворимости изучаемого вещества в воде.

Для изучения отношения данного порошка к кислотам была проведена серия опытов с использованием основных минеральных кислот. Результаты анализов представлены в таблице 4.

Анализ полученных данных позволил сделать предварительный вывод о возможном химическом составе образца порошка с обгоревшего сердечника. Данный образец содержит смесь двух оксидов урана (диоксид урана – UO_2 и окись-закись урана U_3O_8), образование которых было спровоцировано процессом горения артиллерийских снарядов. В результате чего уран, входящий в состав данных образцов, окислился до указанных оксидов. По литературным данным, уран горит на воздухе с образованием именно этих оксидов [2, 3]. Химические свойства данных оксидов полностью совпадают с описанием их свойств в литературе [4].

Для определения типа загрязнения металлической поверхности (снимаемое, не снимаемое), поврежденную гильзу 30 мм снаряда, предварительно измеренную на гамма-спектрометре, промыли в мыльном растворе, высушили и затем снова измерили. Измерение до дезактивации показало наличие в образце ^{234}Pa и ^{235}U , после дезактивации данных радионуклидов обнаружено не было.

Обзор физико-химических свойств образцов, поступивших с территории хранилищ № 9 и № 18 бывшего военного арсенала, показал, что основную опасность в данном случае может представлять черный порошок с обгоревшего сердечника. В связи с наличием в пробе обедненного урана в виде диоксида и окиси-закиси возникают две проблемы: с одной стороны – радиация, с другой – токсичность. Существование мелкой пылевидной фракции обостряет данную ситуацию.

Наличие снимаемого загрязнения на металлических поверхностях поврежденных снарядов дает реальную возможность провести дезактивацию данных материалов, а факт плохого растворения соединений урана в воде позволит очистить промывные воды методом фильтрации. Образующиеся твердые радиоактивные отходы будут менее объемны и компактны.

Таблица 4. Результаты опытов с использованием основных минеральных кислот

Вещества	HCl, конц.	HNO ₃ , конц.	H ₂ SO ₄ , конц.		HF, конц.
			холодная	горячая	
Исследуемый порошок	Не реагирует	Реагирует	Слабо реагирует с образованием зеленовато-серого осадка, с выделением бесцветного газа, реакция экзотермическая	Реагирует с образованием зеленовато-серого осадка, выделяется бесцветный газ	Реагирует с растворением осадка и образованием зеленовато-голубого раствора

Таким образом, исследованные образцы являются сердечниками артиллерийских снарядов. Данные образцы подверглись термическому воздействию, в результате которого произошло изменение структуры материала. Появился дополнительный объект исследования – черный порошок. Как показали гамма-спектрометрические исследования, радионуклидный состав сердечников и черного порошка идентичен и представляет собой смесь изотопов урана. Массовое содержание ^{235}U составляло порядка 0,3% от общего количества урана, что классифицирует материал образцов, как "обедненный" уран.

1.3. Объем загрязненных материалов и их категоризация

1.3.1. Боеприпасы

По данным, предоставленным главным управлением боеприпасов Вооруженных Сил Республики Казахстан, в войсковой части 89533 (п. Токрау) стояли на хранении 125 мм бронебойные подкалиберные и 30 мм бронебойные выстрелы.

Образец 30 мм снаряда представляет собой урановый металлический наконечник коричневатого цвета со следами окиси урана желто-зеленого цвета. Некоторые наконечники имеют обтекатели белого цвета. В ходе визуальной оценки было обнаружено небольшое количество уцелевших наконечников, из чего были сделаны выводы, что большая часть снарядов была разрушена, а наконечники из металлического урана разбросаны и перемешаны с обгоревшим упаковочным материалом (металлические тубы, крепление ящиков и др.), в том числе, с почвой. Наконечники от 30 мм боеприпасов различного типа встречались на поверхности грунта в радиусе до 50 м от хранилища.

По результатам осмотра было установлено, что в хранилищах № 9 и № 18 имелось большое количество, как разорвавшихся, так и снаряженных 30 мм боеприпасов и их наконечников.

МЭД от обнаруженных урановых 30 мм наконечников составляла около 6 мкЗв/ч, плотность потока β -частиц от наконечников составляла $5 \cdot 10^3$ част/мин·см².

Общее количество 30 мм бронебойных выстрелов в войсковой части 89533 составляло 101936 штук. Их тактико-технические характеристики:

- масса выстрела – 0,853 кг;
- масса метательного заряда – 0,127 кг;
- масса окончательного снаряженного снаряда – 0,4 кг.

Таким образом, общая масса 30 мм бронебойных выстрелов составляла 12946 кг.

По МЭД 30 мм снаряды относятся к низкоактивным РАО I группы, в соответствии с ТБпСПиХРО [5] и СПОРО-97 [6] (в соответствии с [5], к низкоактивным РАО относятся вещества с превышением мощности дозы гамма-излучения над фоном от 0,001 мГр/ч до 0,3 мГр/ч (для данной территории фоновые значения МЭД составляют 0,13-0,15 мкЗв/ч), в соответствии с [6] к I группе отходов относятся вещества с МЭД до 0,3 мЗв/ч). По плотности потока β -частиц данные боеприпасы относятся к низкоактивным РАО, в соответствии с ТБпСПиХРО [5] (в соответствии с [5], к низкоактивным отходам относятся вещества с плотностью потока β -частиц от $5 \cdot 10^2$ до 10^4 част/мин·см²).

125 мм бронебойные подкалиберные боеприпасы хранились только в хранилище № 18. Внутри некоторых транспортных тубусов присутствовали обгоревшие сердечники от боеприпасов, также сердечники присутствовали и в общей массе металлических изделий.

В отличие от образца 30 мм снаряда, образец 125 мм снаряда был подвержен сильному термическому воздействию, в результате чего сердечник под воздействием окислительных процессов во время горения был частично или полностью разрушен. В результате горения сердечника образовалась смесь двух оксидов урана (диоксид урана – UO_2 и окись-закись урана U_3O_8), представляющая собой порошок черного цвета.

МЭД на поверхности сердечника достигала 14 мкЗв/ч, плотность потока β -частиц – $5 \cdot 10^3$ част/мин·см².

Общее количество 125 мм бронебойных подкалиберных боеприпасов в войсковой части 89533 составляло 6245 штук. Их тактико-технические характеристики:

- масса выстрела – 20,43 кг;
- масса метательного заряда – 8,86 кг;
- масса окончательного снаряженного снаряда – 7,05 кг.

Таким образом, общая масса 125 мм бронебойных подкалиберных боеприпасов составляла 44027 кг.

По МЭД 125 мм снаряды относятся к низкоактивным РАО I группы, в соответствии с ТБпСПиХРО [5] и СПОРО-97 [6]. По плотности потока β -частиц снаряды относятся к низкоактивным РАО, в соответствии с ТБпСПиХРО [5].

Сводная информация по боеприпасам представлена в таблице 5.

Таблица 5. Общая информация по боеприпасам

Вид боеприпаса	Кол-во	Масса, кг			Активность, Ки	
		снаряда	$^{235}\text{U}^*$	$^{238}\text{U}^*$	^{235}U	^{238}U
30 мм бронебойного выстрела	101936	0,127	40,13	12905,74	0,09	4,34
125 мм бронебойных подкалиберных	6245	7,05	136,48	43890,77	0,29	14,76
Суммарное значение		57000	176,6	56796,51	0,38	19,1
Примечание: * – по результатам лабораторных исследований, соотношение изотопов урана в боеприпасах составляет примерно 99,69% ^{238}U и 0,31% ^{235}U по массе						

Суммарная масса 30 мм бронебойных и 125 мм бронебойных подкалиберных выстрелов составляла ~57000 кг. С учетом способа первичной упаковки, объем РАО составляет порядка 85 м³.

1.3.2. Радиоактивно-загрязненный грунт Хранилище № 9

Объем грунта в западной части хранилища ориентировочно равнялся 250 м³, в восточной части – 370 м³. Общий объем грунта в навалах хранилища составлял порядка 720 м³.

По результатам гамма-спектрометрических исследований, содержание ²³⁸U в грунте не превышало 10⁴ Бк/кг, что не является РАО, а относится к материалам ограниченного использования (МОИ) в соответствии с СанПиН [7]. По предварительным оценкам, под категорию МОИ было отнесено около 10% от объема грунта, то есть ~70 м³.

Хранилище № 18

Объем грунта в западной части хранилища ориентировочно равнялся 80 м³, в восточной части – 540 м³. Общий объем грунта в навале составлял порядка 620 м³.

В хранилище № 18, помимо 30 мм снарядов, хранились и 125 мм, которые в результате горения и разрушения привели к радиоактивному загрязнению поверхностного слоя почвы. По измеренным значениям МЭД, данная почва не относится к РАО. По содержанию U²³⁸ – относится к радиоактивным отходам, так как значение активности в 4 раза превышает МЗУА, допустимую по НРБ-99 (10000 Бк/кг). По предварительным оценкам, под категорию РАО попадало около 20% от общего объема грунта, то есть ~120 м³ (часть верхнего слоя почвы, перемешанного с продуктами горения боеприпасов), под категорию МОИ – 25%, то есть ~150 м³.

1.3.3. Металлические изделия

Объем металлических изделий (транспортные тубусы, осколки боеприпасов и т.д.) в хранилище № 18, по оценкам, мог достигнуть 370 м³, в хранилище № 9 – 180 м³. По результатам исследований было

определено, что большая часть металлических изделий после очистки относится к материалам неограниченного использования и будет передана заказчику для утилизации. Часть загрязненных металлических фрагментов, по предварительным оценкам, не должна была превысить 5% и попадет под категорию МОИ. Их ориентировочный объем, по оценкам, не должен был превысить 30 м³.

2. ПРОВЕДЕНИЕ РАБОТ ПО УТИЛИЗАЦИИ РАО

Проведение работ осуществлялось в соответствии с разработанным проектом. На рабочий проект была проведена оценка воздействия на окружающую среду, на которую было получено заключение независимой экологической экспертизы и проведено согласование в надзорных органах: в Министерстве охраны окружающей среды и Комитете по атомной энергетике РК.

Для осуществления работ на месте их проведения был развернут полевой лагерь со всей соответствующей инфраструктурой (рисунок 5, 6). Работы проводились поэтапно в течение 2 лет. Они начались со сбора и утилизации разлетевшихся радиоактивных боеприпасов с прилегающей территории. Далее проводился разбор и зачистка территорий хранилищ № 18 и № 9, соответственно. По окончании работ было проведено заключительное радиоэкологическое обследование как хранилищ, так и прилегающей территории. Все работы проводились совместно со специалистами Министерства обороны. Министерством обороны выполнялись работы по обеспечению взрывобезопасности при проведении работ, разбору завалов с использованием тяжелой техники, обеспечению работы инфраструктуры объекта. Необходимо отметить, что, в связи с тем, что на месте работ находилось большое количество снаряженных боеприпасов, все работы по изъятию и утилизации РАО проводились с постоянным сопровождением военных саперов (рисунок 7).

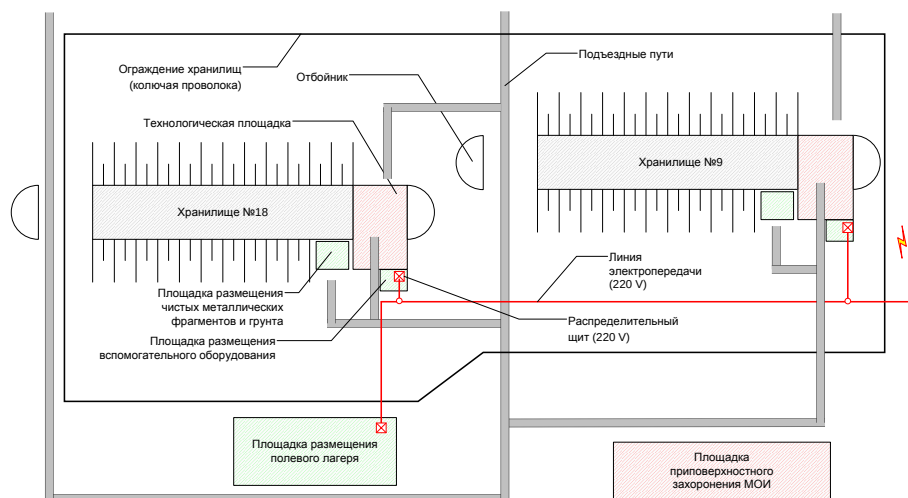


Рисунок 5. Схема расположения технологических площадок и полевого лагеря



Рисунок 6. Вид технологических площадок и полевого лагеря



Рисунок 7. Работа военного специалиста сапера

2.1. Технология изъятия РАО

На основании проведенных исследований была разработана технология изъятия радиоактивных отходов. Изъятие РАО проводилось в четыре этапа по следующей схеме (рисунок 8).

1 этап – сбор сыпучих РАО.

Сбор сыпучих радиоактивных материалов проводился по мере продвижения работ по очистке хранилищ с использованием промышленного пылесоса. Наполненные фильтрующие пакеты помещались в контейнер для сбора РАО.

2 этап – поиск и сбор радиоактивных фрагментов.

По мере разбора навала осуществлялся поиск и сбор радиоактивных фрагментов (сердечников боеприпасов) специальными металлическими манипуляторами (щипцами). Транспортировка до площадки дозиметрического контроля и погрузки в контейнеры с РАО проводилась в металлических ведрах. Радиоактивные фрагменты, относящиеся к РАО, упаковывались в первичную тару и помещались в кон-

тейнер для сбора РАО. Фрагменты, относящиеся к МОИ, помещались на площадку размещения МОИ.

3 этап – сбор нерадиоактивных металлических фрагментов.

Данный этап состоял из нескольких подэтапов:

- сбор транспортных тубусов 125 мм подкалиберных боеприпасов;
- сбор других нерадиоактивных фрагментов;
- очистка загрязненных металлических фрагментов.

По мере разбора навала хранилищ производился сбор транспортных тубусов, содержащих в себе радиоактивный материал (остатки сгоревших боеприпасов). Собранный радиоактивный материал из тубусов упаковывался в первичную тару и помещался в контейнер для сбора РАО. Прочие металлические нерадиоактивные фрагменты (элементы конструкции хранилища, фрагменты разорвавшихся нерадиоактивных боеприпасов и др.) транспортировались до площадки дозиметрического контроля.



Рисунок 8. Блок-схема поэтапного изъятия РАО

На площадке дозиметрического контроля проводилась оценка наличия радиационного загрязнения металлоконструкций. В случае, если радиоактивное загрязнение не было обнаружено, фрагменты утилизировались обычным способом, если радиоактивное загрязнение присутствовало, металлические фрагменты подвергались дезактивации. В случае невозможности дезактивации фрагментов металлоконструкций, радиоактивные фрагменты, относящиеся к РАО, упаковывались в первичную тару и помещались в контейнер для сбора РАО. Фрагменты, относящиеся к МОИ, помещались на площадку размещения МОИ.

Металлические элементы и конструкции, на которых было обнаружено радиоактивное загрязнение, проходили очистку от радиоактивных материалов на специально отведенной и оборудованной площадке. Собранные металлические элементы загружались в специальную мойку (рисунок 9), где производилась дезактивация с использованием аппарата высокого давления.



Рисунок 9. Дезактивация металлических элементов

Для исключения разбрызгивания и утечки воды, непосредственно над мойкой была установлена металлическая рамка с закрепленными на ней пластиковыми шторами. Вода после дезактивации металлоконструкций проходила очистку через фильтрующие элементы (щебень, песок или иной фильтрующий ма-



Рисунок 10. Чистый металлолом подготовлен к передаче представителю МО

териал) и после фильтров тонкой очистки поступала обратно в емкость для мытья. Этим обеспечивался замкнутый цикл циркуляции воды. Для контроля концентрации радионуклидов в рециркулируемой жидкости периодически проводилось определение удельной радиоактивности в воде. По мере забивки фильтрующих емкостей и отстойников воды производилась чистка, а также замена их наполнителей и фильтрующих элементов. Осадок и фильтрующие элементы подвергались дозиметрическому контролю. В случае отнесения материала фильтрующих элементов к РАО они упаковывались в первичную тару и помещались в контейнер для сбора РАО, иначе – помещались на площадку размещения МОИ.

4 этап – контроль наличия в грунте радиоактивных материалов.

После проведения работ по сбору металлических элементов осуществлялось просеивание грунта с использованием вибросита, без перемещения грунта за пределы склада. Данная процедура гарантировала, что в грунте не остались радиоактивные фрагменты (сердечники боеприпасов). Просеивание грунта осуществлялось с помощью вибросита через сетку (ячейка ~0,8-1 см), что обеспечивало отсеивание и сбор металлических элементов размером >0,8-1 см. Подача грунта осуществлялась вручную через приемный бункер вибросита. Просеянные металлические элементы поступали на площадку дозиметрического контроля, где проходили контроль на наличие радиационного загрязнения. Просеянный грунт также подвергался дозиметрическому контролю на наличие радиоактивного загрязнения. В случае, если радиоактивное загрязнение не было обнаружено, фрагменты передавались представителю МО для дальнейшей утилизации обычным способом (рисунок 10), если радиоактивное загрязнение присутствовало, то проводилась его категоризация. Грунт, относящиеся к РАО, упаковывался в первичную тару и помещался в контейнер для сбора РАО. Отходы, относящиеся к МОИ, помещались на площадку размещения МОИ.



Рисунок 11. Вид транспортной упаковки

2.2. Упаковка и транспортировка РАО

При проведении работ по изъятию, РАО были упакованы в первичную тару и помещены в транспортную упаковку (рисунок 11).

Транспортировка РАО проводилась по маршруту п. Токрау – г. Курчатова автомобильным транспортом в соответствии с требованиями в РК. После транспортировки транспортная упаковка с РАО была размещена на длительное хранение на комплексе "Байкал" Института атомной энергии НЯЦ РК (г. Курчатова). Всего за время работ было осуществлено более 30 рейсов по транспортировке РАО. Объем РАО, размещенных на длительное хранение, составил 330 м³.

2.3. Обеспечение РБ при проведении работ

Так как проведение работ по утилизации источников радиоактивного загрязнения на территории хранилищ № 9 и № 18 связано с реальной радиационной опасностью для персонала, эти работы были отнесены к классу радиационно-опасных. На этом основании были разработаны меры по обеспечению радиационной безопасности персонала с непрерывным радиационным и индивидуальным дозиметрическим контролем.

В процессе работ персонал подвергался комбинированному радиоактивному облучению – внешнему и внутреннему, при ингаляционном поступлении радионуклидов в организм. Основным источником опасности внешнего облучения являлись гамма-излучающие радионуклиды (²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴Th, ²³⁴Pa), внутреннего облучения – мелкодисперсные частицы и аэрозоли, содержащие α- и β-излучающие радионуклиды (²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴Th, ²³⁴Pa). При проведении работ были учтены все виды лучевого воздействия на персонал, предусмотрены защитные мероприятия, снижающие суммарную дозу от всех источников внешнего и внутреннего облучения до уровней, не превышающих предельно допустимой дозы или предела дозы для соответствующих категорий облучаемых лиц. При проведении работ в условиях загрязнения воздуха радиоактивными веществами персонал обеспечи-

вался дополнительной одноразовой спецодеждой, специальными фильтрующими или изолирующими средствами защиты органов дыхания (рисунок 12). Радиационный контроль включал организацию и проведение наблюдений за радиационной обстановкой на территории рабочей площадки и в хранилищах.

В зависимости от характера проводимых работ устанавливалась следующая номенклатура параметров радиационного контроля:

- измерение мощности дозы гамма-излучения, плотности потоков α-частиц и β-частиц ионизирующего излучения в хранилищах;
- измерение уровней загрязнения радиоактивными веществами рабочих поверхностей, оборудования, транспортных средств, средств индивидуальной защиты, кожных покровов и одежды персонала;
- определение удельной активности и мощности дозы гамма-излучения твердых радиоактивных отходов (рисунок 13).

На основании этих параметров проводилась оценка вероятной дозовой нагрузки на персонал, работающий в рабочей зоне. Контроль радиоактивного загрязнения рабочей зоны, оборудования, оснастки, транспортных средств осуществлялся прямыми измерениями с помощью переносных приборов и методом снятия мазков.

Индивидуальный контроль облучения персонала включал в себя:

- радиометрический контроль загрязненности кожных покровов и средств индивидуальной защиты;
- контроль доз внешнего бета- и гамма- излучения с использованием индивидуальных дозиметров накопительного типа (ТЛД). При работах на загрязненных участках дополнительно персонал обеспечивался прямопоказывающими дозиметрами;
- контроль внутреннего поступления изотопов U по его содержанию в моче.



Рисунок 12. Работа с использованием дополнительных средств индивидуальной защиты



Рисунок 13. Определение удельной активности и мощности дозы

Результаты контроля доз внешнего бета- и гамма-излучения показали, что дозы, полученные персоналом во время проведения ликвидационных работ, лежат в диапазоне от 0,3 до 2,4 мЗв/год. Полученные дозы значительно (~ 8 раз) ниже предела доз, установленного для персонала НРБ-99.

Контроль доз внутреннего облучения от возможного поступления изотопов урана в организм проводился посредством анализа проб мочи персонала методом ICP-MS с использованием методики [8]. Содержание урана в исследованных пробах мочи находилось в пределах 0,06-1,9 мкг/л. Среднее содержание составило 1,4 мкг/л, ожидаемая годовая доза внутреннего облучения – 0,2 мЗв, что в 100 раз ниже предела доз, установленного для персонала НРБ-99. Соотношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ составило 0,0072, что близко к природному соотношению этих изотопов. Этот факт говорит о том, что в данном случае мы регистрировали природный уран, поступающий в организм естественным путем (с пищей, водой и т.д.), а не обедненный (техногенный) уран с изотопным соотношением 0,003 (с которым проводились работы), что свидетельствует об отсутствии внутреннего поступления радионуклидов ингаляционным путем при проведении работ.

Таким образом, проведение мероприятий по обеспечению радиационной безопасности персонала при ведении работ позволило исключить случаи получения повышенных доз внешнего облучения и исключить внутреннее поступление радионуклидов ингаляционным путем.

3. СОВРЕМЕННАЯ РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА В ХРАНИЛИЩАХ И НА ПРИЛЕГАЮЩЕЙ ТЕРРИТОРИИ

В результате проведенных ликвидационно-консервационных работ, включающих утилизацию образовавшихся радиоактивных отходов и их захоронение, а также природоохранные мероприятия, радиационная обстановка на территории хранилищ и прилегающей территории была восстановлена до нормального уровня. Результаты распределения МЭД на территории хранилищ и прилегающих территориях после проведения работ представлены на рисунке 14.

Диапазон значений МЭД на обследуемых территориях составил:

- на территории, прилегающей к хранилищам – от 0,18 до 0,24 мкЗв/ч;
- на территории хранилища № 9 – от 0,18 до 0,29 мкЗв/ч;
- на территории хранилища № 18 – от 0,15 до 0,45 мкЗв/ч.

На прилегающих территориях МЭД не превышает 0,24 мкЗв/ч. Повышенный уровень МЭД на локальных участках хранилища № 18 обусловлен остаточным наличием продуктов горения урана, инкорпорированных в бетонные конструкции пола. Удельная активность данных конструкций находится ниже уровня радиоактивных отходов и не представляет опасности. Конструкции переданы представителю МО для дальнейшего демонтажа и утилизации обычным способом.

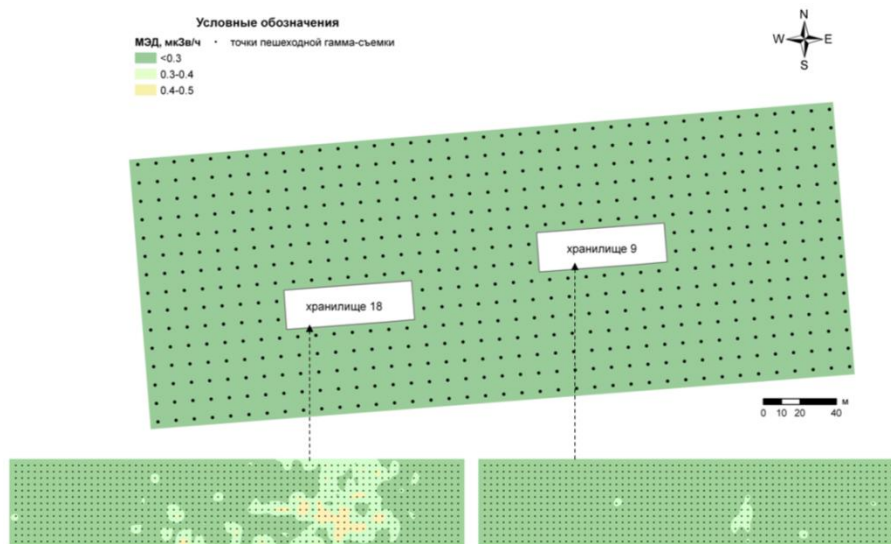


Рисунок 14. Распределение МЭД на территории хранилищ и прилегающей территории

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведения работ была исключена опасность распространения радиоактивного загрязнения, образовавшегося в результате чрезвычайной ситуации на территории войсковой части 89533 (п. Токрау). Все имеющиеся на объекте радиоактивные отходы утилизированы и размещены на дли-

тельное хранение на комплексе "Байкал" Института атомной энергии НЯЦ РК (г. Курчатова).

По результатам радиологического обследования и сравнительного анализа спектрометрических исследований проб, отобранных до и после проведения работ, можно сделать вывод, что радиационная опасность в районе хранилищ № 18 и № 9 и приле-

гающих к ним территориях ликвидирована. На прилегающих территориях МЭД не превышает 0,24 мкЗв/ч. Повышенный уровень МЭД на локальных участках хранилища № 18 обусловлен остаточным наличием продуктов горения урана, инкорпорированных в бетонные конструкции пола. Удельная активность данных конструкций находится ниже уровня радиоактивных отходов и не представляет опасности. В результате заключительного обследования исследуемого объекта подтверждена безопасность проведенных работ и отсутствие отрицательного антропогенного воздействия на существующую экосистему.

ЛИТЕРАТУРА

1. Нормы радиационной безопасности (НРБ-99): СП 2.6.1. 758-99; введ. в действие 01.01.2000. – Алматы: Агентство по делам Здравоохранения РК, 1999. - 80с. – ISBN 9965-501-42-4.
2. Громов, Б.В. Введение в химическую технологию урана /Б.В. Громов. - М.: Атомиздат, 1978. - С. 228-240.
3. Несмеянов, А.Н. Радиохимия / А.Н. Несмеянов. - М.: Химия, 1978. - С. 285-286; 290-299; 300.
4. Справочник химика. Основные свойства неорганических и органических соединений. Т 2.– Л. - М.: Химия, 1964. – С. 232-235.
5. Требования безопасности при сборе, переработке и хранении радиоактивных отходов (ТБСПХ-2003). - Алматы, 2003.
6. Санитарные правила обращения с радиоактивными отходами (СПОРО-97), № 5.01.011-97 от 12.09.97: утв. гл. государственный санитарный врач РК //Сборник санитарных правил и норм по радиационной гигиене. Ч.1. - 1998. – С.110-147.
7. Санитарные правила и нормы «Санитарно-гигиенические требования по обеспечению радиационной безопасности»: утв. приказом Министра здравоохранения РК. - 2003. – 74с.
8. МУК 4.1.1483-03. Методы контроля. Химические факторы. Определение содержания химических элементов в диагностируемых биосубстратах, препаратах и биологически активных добавках методом масс-спектрометрии с индуктивно связанной аргонной плазмой. – 26 с.

За все время проведения радиационно-опасных работ персонал, выполнявший работы по утилизации источников радиоактивного загрязнения на территории бывшего военного арсенала, не получил дозы радиоактивного облучения, превышающей нормируемые величины в соответствии с НРБ-99.

НЯЦ РК выражает глубокую признательность Министерству обороны за оказанную помощь при проведении работ. Особую благодарность – генерал-майору Даирову М.К., полковнику Уркенову Ж.Ж., подполковнику Коновалову Е.А., подполковнику Казиеву Ш.Ж. и подполковнику Омарову Ж.Ш.

БҰРЫНҒЫ ӘСКЕРИ АРСЕНАЛ ОРНАЛАСҚАН ТОҚЫРАУ п. АУМАҒЫНДАҒЫ РАДИОАКТИВТІ ЛАСТАНҒАН КӨЗДЕРДІ КӘДЕГЕ ЖАРАТУ

Дмитропавленко В.Н., Осинцев А.Ю., Коровина О.Ю., Мустафина Е.В.

ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Қазақстан, Курчатова

2001 ж. Қарағанды облысының Ақтоғай ауданында орналасқан «Арсенал» әскери базасында өрт шығып, соның кесірінен оқ-дәрі қоймаларына зиян келген еді. Өрттен кейін арсеналдың екі құрылысында жоғары радиациялық қауіптілік көздері анықталды. 2006 ж. жою-жабу жұмыстарын жүргізу туралы шешім қабылданды, оған қалыптасқан радиоактивті қалдықтарды кәдеге жарату және оларды көму бойынша жұмыстар енгізілді. Аталған жұмыстарды ҚР Ұлттық ядролық орталығы ҚР Қорғаныс министрлігінің мамандарымен бірлесе отырып жүргізген болатын. Өткізілген жұмыстардың барысында төтенше жағдайдың нәтижесінде орын алған радиоактивті ластанудың таралу қауіпінің алдын алу жүзеге асты. Нысанда орналасқан барлық радиоактивті қалдықтар (РАҚ) кәдеге жаратылды және «Байкал» кешеніне ұзақ мерзім бойы сақтау мақсатында орналастырылды. Қорытынды зерттеулер нәтижесінде өткізілген жұмыстардың қауіпсіздігі және қазіргі экожүйеге теріс антропогенді әсер етпегені анықталды. Радиациялық-қауіпті жұмыстар жүргізу кезінде бұрынғы әскери арсенал аумағында радиоактивті ластану көздерін кәдеге жарату бойынша жұмыстарды орындаған қызметкерлер нормаланған мөлшерден асатын радиоактивті сәулелену дозаларын алған жоқ.

**UTILIZATION OF RADIOACTIVE CONTAMINATION SOURCES
AT FORMER MILITARY ARSENAL IN TOKRAU SETTLEMENT**

V.N. Dmitropavlenko, A.Yu. Osintcev, O.Yu. Korovina, E.V. Mustafina

Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

In 2001, the military base “Arsenal” located in Aktogay area, Karaganda region, suffered from a fire. As a result the ammunition depots were damaged. The sources of high radioactive danger were detected in two storages of the arsenal. In 2006, the decision was made to carry out the elimination-conservation activities including utilization of generated radioactive wastes and their disposal. These activities were implemented by National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan and specialists of the Ministry of Defense of the Republic of Kazakhstan. As a result, the danger of radioactive contamination distribution was eliminated. All the radioactive wastes located at the site were utilized and placed for long-term storage at the complex “Baikal”. Final survey of the site confirmed safety of the conducted activities and elimination of negative man-made influence on the existing ecosystem. During implementation of the activities the personnel involved didn’t receive radiation doses exceeding the prescribed limits.

УДК 577.4: 622.278: 621.039.9

ОЦЕНКА ВОЗМОЖНОСТЕЙ ПРОТЕКАНИЯ ПРОЦЕССОВ КАТАСТРОФИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА НА ПЛОЩАДКЕ «БАЛАПАН»

¹Субботин С.Б., ¹Лукашенко С.Н., ¹Генова С.В., ¹Романенко В.В., ²Русинова Л.А., ²Дроздов А.В., ³Чернова Л.М.

¹*Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

²*Институт геофизических исследований НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

³*Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан*

В статье представлены результаты исследования последствий подземных ядерных взрывов (ПЯВ) связанных с просадочными явлениями и процессами подземной газификации горных пород. Приведены результаты по изучению состава и концентрации газов поступающих из блоков горных пород, вмещающих центральные зоны ПЯВ, на дневную поверхность. Дана оценка значимости опасностей, связанных с эффектами остаточных проявлений долговременной геотермальной активности в эпицентральных зонах ПЯВ, как локальных процессов катастрофического характера. Также, впервые приведены данные по результатам топографического мониторинга, которые позволили установить сведения о провальных явлениях и их динамике на ряде скважин.

ВВЕДЕНИЕ

Кроме опасности радиационного воздействия на территории бывшего Семипалатинского испытательного полигона (СИП) присутствует и ряд других опасностей, связанных с эффектами остаточных проявлений долговременной геотермальной активности в эпицентральных зонах подземных ядерных взрывов (ПЯВ) и наличием необрушенных «котловых» полостей.

По свидетельству военных и гражданских специалистов, работающих в г. Курчатове во время проведения ПЯВ, из скважин нередко происходило бурное выделение газов. Было несколько случаев самовозгорания газов и их многосуточного, устойчивого горения. Наиболее мощное катастрофическое проявление газоносности территории произошло в апреле 1992 года на площадке «Балапан» на приустьевом участке «боевой» скважины «Глубокая» (ПЯВ произведен в 1977 г.). В апреле 1992 года произошло внезапное воронкообразное проседание (провал) поверхности земли возле устья этой «боевой» скважины. Образование провала поверхности сопровождалось взрывом и пожаром. В настоящее время образовавшаяся воронка имеет диаметр более 200 м и глубину до 20 м. Данное событие можно оценить как локальное явление катастрофического характера. Это произошло спустя 15 лет после проведения в этой скважине ядерного взрыва. В истории проведения ПЯВ на СИП подобных эффектов не наблюдалось ни в момент испытаний, ни после их проведения.

Долгое время событие на скважине «Глубокая» обрастало слухами и разговорами, но системное и детальное изучение данной проблемы началось только в 2007 г. в рамках отраслевой программы 011 «Обеспечение безопасности СИП». На повестке дня встал логический вопрос: могут ли такие явления повторяться и как обстоят дела на других «боевых» скважинах.

1. ПРЕДПОСЫЛКИ ВОЗНИКНОВЕНИЯ ЯВЛЕНИЙ КАТАСТРОФИЧЕСКОГО ХАРАКТЕРА НА ПЛОЩАДКЕ «БАЛАПАН»

1.1. Геологическое строение и гидрогеологические условия площадки «Балапан»

Одним из основных факторов возникновения процессов подземной газификации являются особенности геологического строения и гидрогеологических условий площадки «Балапан» [1,2].

Большая часть территории площадки сложена отложениями каменноугольной системы (рисунок 1). Породы разбиты многочисленными разломами на тектонические блоки. Под воздействием интрузий и тектонических процессов осадочные породы ороговикованы, расланцованы. Отложения представлены песчаниками, пластами углей, углистыми сланцами, а так же туфами андезитовых порфиритов. Мощность отложений данной системы достигает 4000 м. Основная особенность этих осадочных пород в том, что в них в разной степени присутствуют углистые материалы.

Осадки нижней юры распространены исключительно в центральной части площадки. Отложения представлены в основном алевролитами, песчаниками и пластами углей. Мощность пород достигает 300 м. В настоящее время на этой территории разрабатывается месторождение Каражыра.

Гидрогеологические условия. На описываемой территории выделяются два гидрогеологических комплекса, нередко связанных между собой. К первому комплексу относятся воды, залегающие в локальных гидрогеологических бассейнах. Вмещающие породы представлены, рыхлыми образованиями от неогенового до современного возраста. Второй комплекс входит в состав региональной гидрогеологической системы. К нему относятся трещинные воды палеозойского фундамента, воды мезозойской коры выветривания и воды палеогеновых отложений.

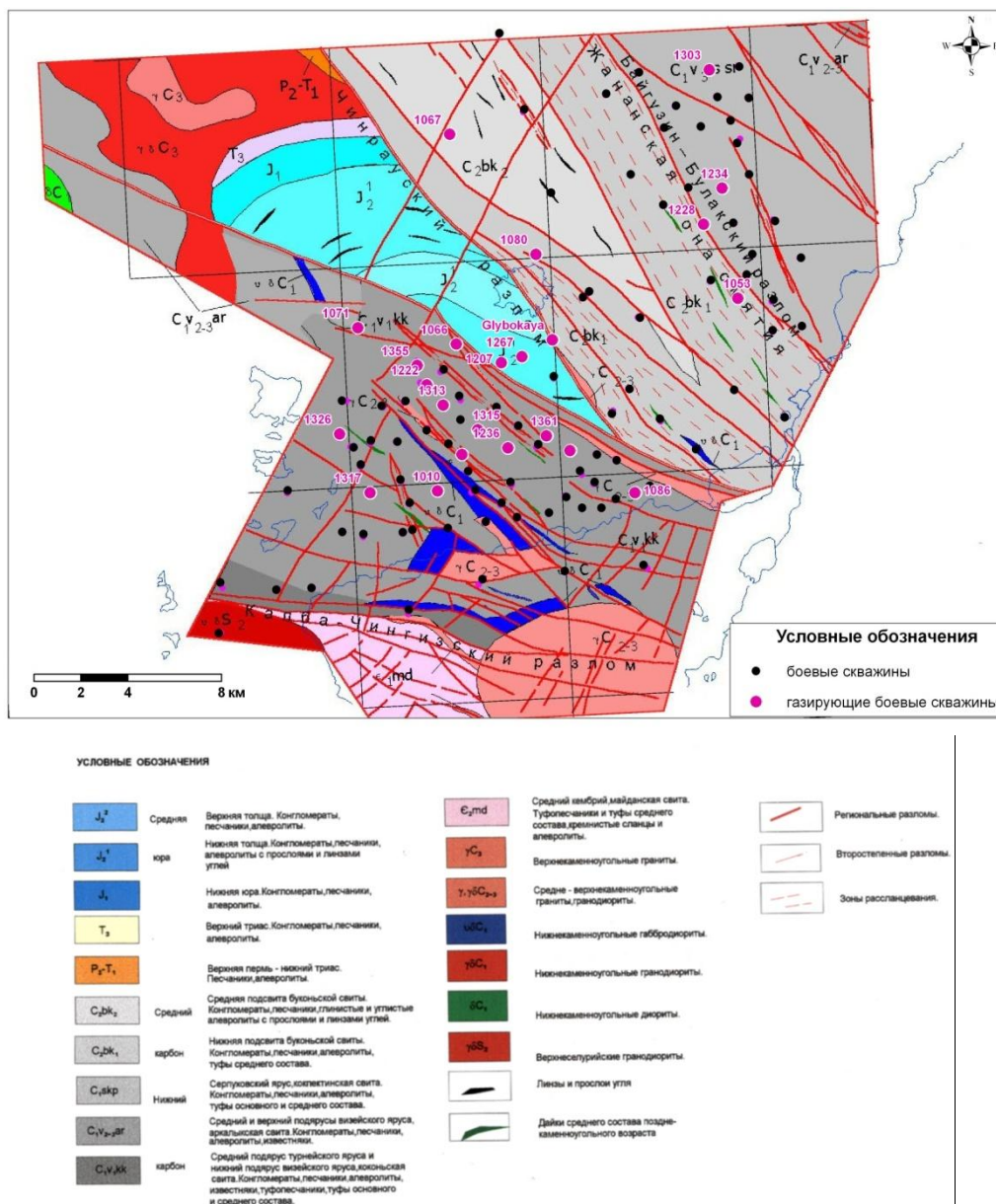


Рисунок 1. Геологическая карта площадки «Балапан» масштаба 1:50 000

Обычно они образуют единый водоносный горизонт мощностью до 100-150 м. На периферии участка Балапан, где расположены дренируемые формы рельефа, уровень трещинных вод приближается к дневной поверхности. На участках, перекрытых водоупорными неогеновыми глинами, трещинные воды приобретают свойства артезианских. Величина напора прямо пропорциональна мощности глин, которая колеблется от нескольких метров до 80 м.

Характер геологического строения и гидрогеологических условий территории дает основание предполагать, что горные породы, распространенные в

пределах площадки Балапан, в результате воздействия поражающих факторов ПЯВ, предрасположены к возникновению и протеканию процессов подземного горения [3].

1.2. Ядерные испытания на площадке «Балапан» и их последствия

1.2.1. Общая информация о ядерных испытаниях на площадке «Балапан»

Всего на площадке «Балапан» 106 «боевых» скважин, в которых были проведены ПЯВ (рисунок 2) [4].

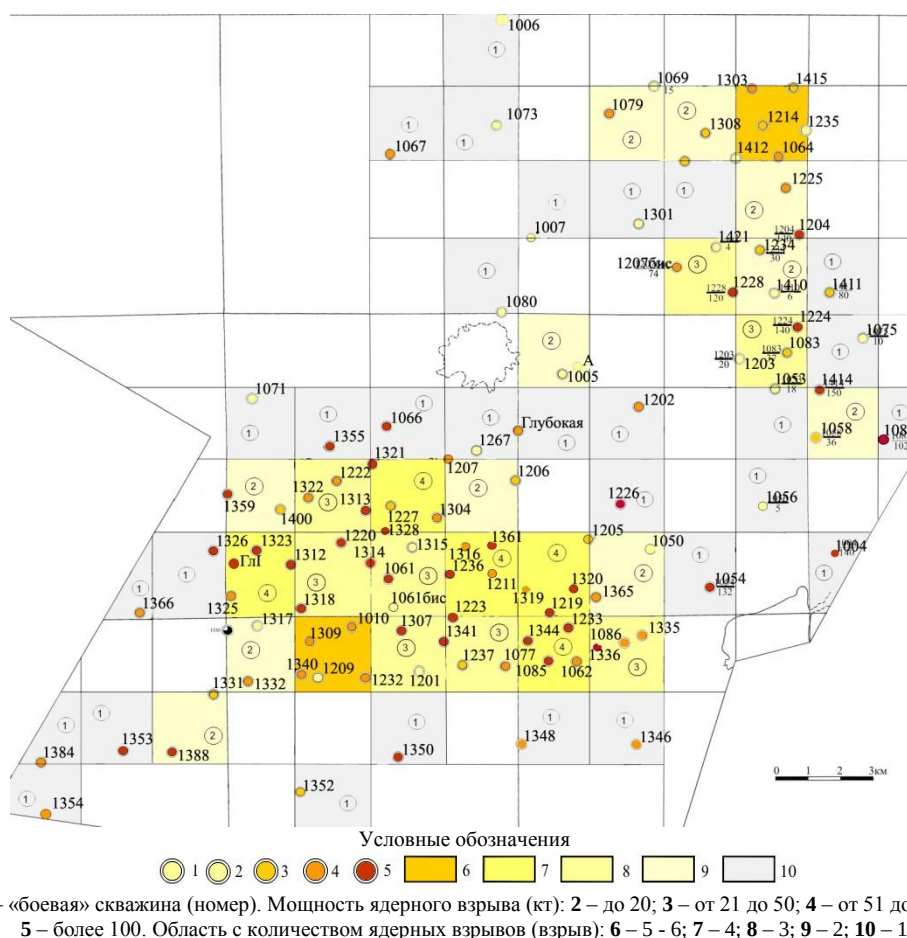


Рисунок 2. Площадка «Балапан». Схема техногенной нагрузки: от мощности ядерного заряда и плотности взрывов

1.2.2. Механические последствия проведения

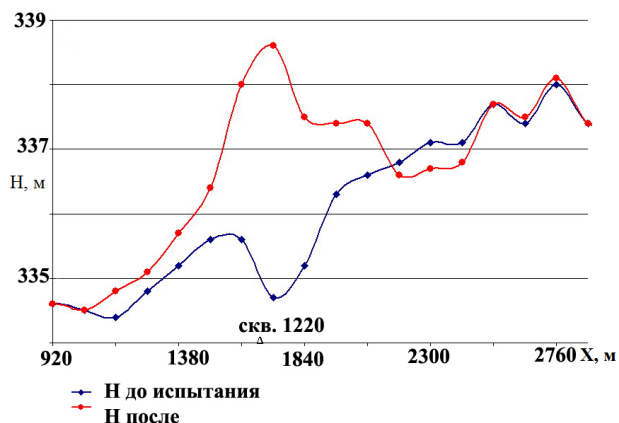
ПЯВ (техногенные изменения земной поверхности)

Освобождение энергии ядерного взрыва происходит за период времени порядка одной микросекунды, увеличивая температуру заряда до десятков миллионов градусов [5-9]. Вещество заряда, нагретого до таких высоких температур, испускает энергию в виде электромагнитного излучения самого широкого спектра – от рентгеновского до длинноволнового. Оценки, выполненные для взрыва Рейниер, показали, что через несколько микросекунд температура в камере взрыва составляла 106 К, а давление 107 атм. В таких условиях вещество заряда и часть прилегающей к камере породы превращается в частично ионизированную плазму. Совместное действие мощной ударной волны и интенсивного теплового излучения испаряет прилегающую к камере породу и образует сферу пара, называемую полостью испарения.

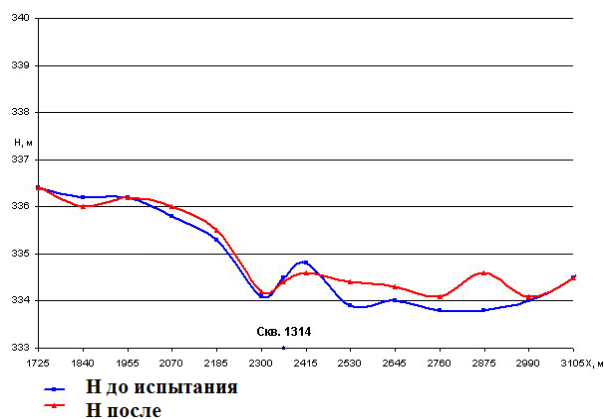
На площадке «Балапан» После испытания ядерного устройства техногенные изменения земной поверхности отмечаются, в основном, в виде вспучи-

вания грунта (скважины 1062, 1075, 1079, 1087, 1220, 1225, 1227, 1235, 1400, 1410), реже в виде незначительных провалов (1233, 1236, 1314, 1316). На некоторых скважинах значения абсолютных отметок остались неизменными (1061бис, 1080, 1202, 1237, 1317). Максимальные изменения дневной поверхности произошли около устьев скважин 1062 и 1220, где вспучивание грунта составило 2,8 м и 3,9 м, соответственно. Техногенные изменения, как правило, отмечаются в радиусе 500 м от устья скважины, но на некоторых скважинах провалы и вспучивание грунта происходили в радиусе более 1500 м (скважина 1062).

На рисунке 3 приведены примеры изменения дневной поверхности (в абсолютных отметках); по одному из четырех профилей, пройденных через устье скважин 1220 и 1314 - до и после проведения ПЯВ. Как видно из рисунка, после проведения ПЯВ на дневной поверхности образовывались как вспучивание грунта, так и провалы с колебанием абсолютных отметок от (-0,4) м до (+3,9) м [10].



а



б

Рисунок 3. Площадка «Балапан». Скважины 1220 и 1314. Характер изменения дневной поверхности после проведения ПЯВ

1.2.3. Температурные изменения в результате проведения ПЯВ

Котловые полости ПЯВ являются долговременными хранителями и источниками тепловой энергии [12, 13, 14, 15]. Наличие техногенных воздействий: зоны максимальной трещиноватости, столба обрушения и зоны разрушения породы — делают ее доступной для выноса тепла и присутствующих газов на поверхность, а при наличии больших температур в котловых полостях и медленному их остыванию этот процесс становится достаточно долгим. Тепловая съемка поверхности показала, что практически у всех исследованных ПЯВ на поверхности в эпицентральной зоне наблюдались кольцеобразные или дугообразные тепловые структуры, охватывающие откольные зоны взрывов. Максимальный радиус тепловой аномалии изменяется в пределах от 80 до 250 м, а ширина теплового кольца — от 20 до 60 м. Обзор материалов по долговременному температурному режиму в блоках горных пород, вмещающих центральные зоны ПЯВ, показывает, что они многие годы имеют высокую внутреннюю температуру, медленно убывающую с течением времени. Детальные исследования поля температур, выполненные для взрыва «Рейниер» (США) мощностью 1,7 кт, показывают, в частности, что максимальная температура в котловой полости через полгода после взрыва составила 94°C, а при взрыве «Рулисон» температура в полости за 6 лет упала лишь до 290°C, т.е. котловые полости ПЯВ являются долговременными хранителями и источниками тепловой энергии

1.3. Процессы подземной газификации и термической деструкции углесодержащих пород

Таким образом, содержание в блоках горных пород, вмещающих центральные зоны ПЯВ, углистых материалов и высоких температур являются факторами способствующими возникновению процессов бескислородной деструкции горных пород. Немаловажное значение имеют подземные воды, имеющие на территории площадки «Балапан» повсеместное

распространение. По системам трещин, образованным в горных породах, подземные воды поступают в полости ПЯВ. В данных условиях при газификации углесодержащих горных пород окислению водяным паром подвергается непосредственно углерод: $C + H_2O = CO + H_2$. Следовательно, протекание процессов бескислородной деструкции в блоках горных пород, вмещающих ПЯВ на площадке «Балапан», происходит в результате взаимодействия трех факторов: наличия углистого материала в горных породах, подземных вод и высоких температур. Другими словами в данных условиях мы имеем место с процессом частичной или неполной газификацией углесодержащих горных пород без доступа воздуха, при котором в газ превращаются такие летучие составляющие как: CO , H_2 , CH_4 и др.

Для организации системы контроля процессов газификации углесодержащих горных пород, вмещающих центральные зоны ПЯВ, рассмотрим традиционное понимание данного процесса в нормальных условиях. И так, при подземной газификации угля в процессе принимают участие горючая масса угля и влага, содержащаяся в нем. При этом, частичной или неполной газификацией угля называется процесс его нагрева без доступа воздуха, при котором в газ превращаются только летучие составляющие (CO , H_2 , CH_4 и др.), а в тепло газа переходит от 10 до 50% теплоты сгорания угля. Полной газификацией угля называется такой процесс, при котором горючий газ образуется не только за счет удаления летучих компонентов из угля, но и за счет его коксового остатка. Полная газификация угля основана на химических реакциях углерода угля с кислородом, при которых образуются двуокись углерода (CO_2) и окись углерода (CO). В качестве источника кислорода может быть кислород воздушного дутья или кислород водяных паров.

В присутствии окислителя, например кислорода, угли могут самовозгораться при температурах ниже 100°C при определённой влажности и размерах кус-

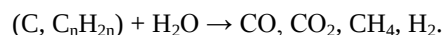
ков. При горении угля в присутствии кислорода основным продуктом горения является углекислый газ. Энергия, необходимая для расщепления O_2 при горении, поставляется самим процессом горения. Таким образом, при горении угля большая часть энергии выделяется в виде теплоты, а часть энергии, идет на инициирование дальнейших реакций. Начавшись, образование диоксида углерода продолжается до тех пор, пока не израсходуется весь углерод.

Стоит так же рассмотреть процесс пиролиза. Состав газообразных продуктов в процессе пиролиза или термической деструкции угля в отсутствии каких-либо реагентов, в том числе и кислорода, существенно зависит от скорости нагревания частицы угля и температуры. Все угли состоят в основном из углерода (60 - 90 %), водорода (<4 – 8 %) и кислорода (2 – 30 %); присутствуют также небольшие количества азота (0.5 – 2 %) и серы (0/5 – 3 %). При наличии повышенных температур угли, а также и углесодержащие вещества могут подвергаться термической деструкции, пиролизу. Состав газообразных продуктов в процессе пиролиза или термической деструкции угля в отсутствии каких-либо реагентов, в том числе и кислорода, существенно зависит от скорости нагревания частицы угля и температуры.

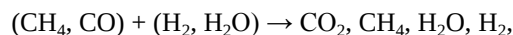
Термические превращения угля начинаются при температурах около 200 °С. Однако уже при нагревании до 120°С выделяются физически связанная влага, адсорбируемые углем газы (диоксид углерода, метан и др.). При этом не наблюдается заметного разложения органической массы угля, хотя не исключены определённые изменения её внутренней структуры. При температурах более 200°С начинается выделение некоторого количества воды, образующейся при термическом разложении органической массы угля, а также оксида и диоксида углерода. Это является результатом достаточно сложных химических превращений. В диапазоне 250-325°С процессы разложения угольного вещества усиливаются. Идёт интенсивное выделение паров воды, оксидов углерода, выделяется некоторое количество сероводорода и органических соединений серы. Глубокое разложение органической массы угля, выделение жидких в обычных условиях веществ (смолы) завершается при температуре около 550°С. При высокотемпературном (до 850°С) превращении меняется состав газа: в нём уменьшается содержание метана и более высокомолекулярных углеводородов при значительном увеличении содержания водорода, в газе появляется HCN. Таким образом, при пиролитическом разложении углесодержащих материалов следует ожидать выделения CO_2 , CO, H_2 , CH_4 [16].

Другим процессом, который способен привести к образованию газов является процесс газификации углесодержащих материалов - превращение твердых топлив (углей, торфа, сланцев) в газы при высокой температуре в присутствии окислителей (газифицирующих агентов). В роли окислителя, в том числе может выступать и вода. При этом может протекать

множество различных реакций, которые условно можно представить следующим образом [17]:



Необходимо также учесть и возможность протекания вторичных реакций, типа:



При этом часть этих реакций является экзотермическими, что может приводить к повышению температуры в реакционном объеме.

Таким образом, наличие таких факторов как углесодержащие материалы, высокие температуры и вода способствует возникновению процессов бескислородной деструкции горных пород. Другими словами в данных условиях мы имеем место с процессом частичной или неполной газификации углесодержащих горных пород без доступа воздуха в сочетании пиролитическими процессами, в результате которых могут образовываться следующие газы: CO, CO_2 , H_2 , CH_4 и др., некоторые из которых являются горючими (CO , H_2 , CH_4).

2. ОЦЕНКА СТАБИЛЬНОСТИ ГАЗОВОГО СОСТАВА "КРИТИЧЕСКИХ" СКВАЖИН

Для изучения динамики процесса газификации горных пород в 2009 году на «критических» скважинах проводился газовый мониторинг (№№ 1010, 1355, 1086, 1236, 1061, 1267, 1053, 1313). Для отбора проб воздуха на приустьевых площадках наблюдаемых скважин были пробурены и оборудованы наблюдательные скважины. Мониторинг проводился с августа по ноябрь месяц 2009 г.

Отбор проб почвенного воздуха проводился при помощи накопительных емкостей (полиэтиленовые канистры объемом 10 л, снабженные патрубками для отбора проб воздуха). Герметичность достигалась путем заглубления емкости на 5-7 см и уплотнения грунта, прилегающего к ее стенкам. Продолжительность накопления газов составляла не менее одних суток. По истечении суток осуществлялся отбор проб газовой смеси из накопительных емкостей.



Рисунок 4. Площадка «Балапан». Отбор проб газа из скважины

Для транспортировки, хранения проб почвенного воздуха применялся аспиратор стеклянный. Принцип действия этого прибора основан на вытеснении газа водой при помощи уравнильной склянки [18-20].

2.1 Результаты работ

Результаты газового мониторинга [21-23] на скважине № 1010 представлены на рисунке 5.

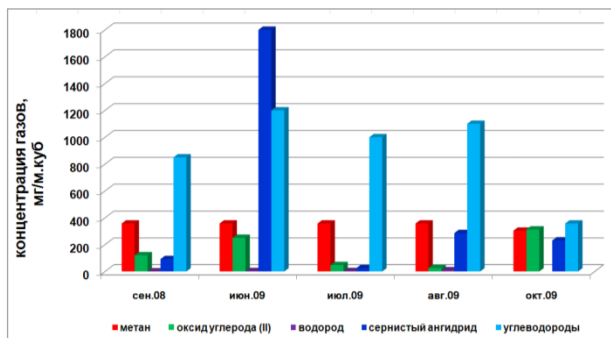
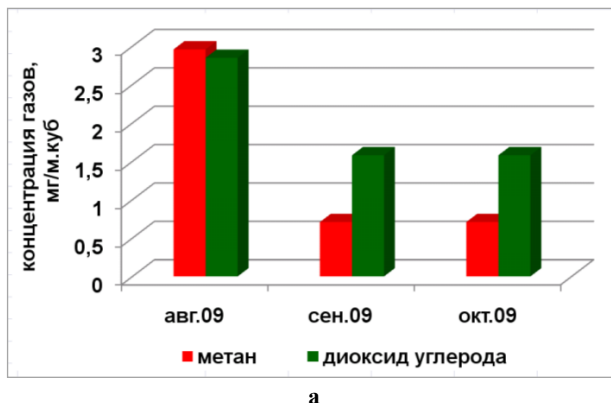
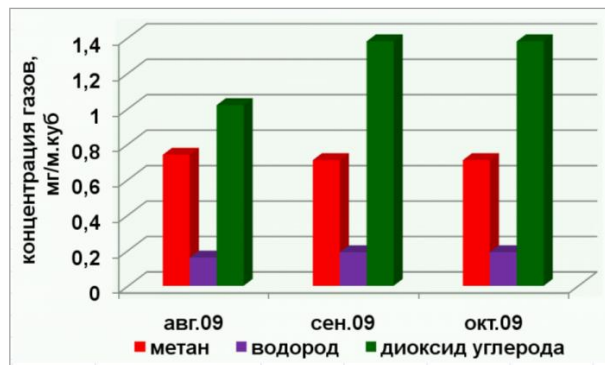


Рисунок 5. Результаты газового мониторинга на скважине 1010



а



б

Рисунок 6. Результаты газового мониторинга на скважинах: а) 1313, б) 1267

Отмечены незначительные как снижения, так и повышения концентрации поступающих на дневную поверхность газов. Каких либо закономерностей в динамике состава газовой смеси обнаружено не было, то есть характерных признаков по усилению либо затуханию процессов подземной газификации горных пород пока не установлено.

2.2.3. Изучение особенностей поступления газов из блоков горных пород на дневную поверхность

Для уточнения особенностей поступления газов из блоков горных пород на дневную поверхность, на приустьевых площадках скважин 1010 и 1355 была проведена площадная газовая съемка [22,23]. В точках наблюдений проводились измерения концентрации газов метана и диоксида углерода. Данные газы были выбраны потому, что они наиболее характерны для процессов горения углесодержащих пород, а также с учетом того, что значения их концентраций значительно превышают фоновые значения на участке скважины № 1010.

За период проведения газового мониторинга в динамике концентрации газов были отмечены следующие особенности. С июня по октябрь отмечалась относительная стабильность содержания в почвенном воздухе углеводородов, в октябре произошло резкое снижение концентрации с 1100 до 357 мг/м³. В июле произошло резкое снижение концентрации сернистого ангидрида с 1800 до 25 мг/м³, далее в августе было отмечено существенное повышение до 286 мг/м³ и октябре опять незначительное снижение концентрации до 230 мг/м³. В динамике содержания других газов (метан, оксид углерода, диоксид углерода и водород) существенных изменений не наблюдалось. Были отмечены как повышения значений их концентрации в почвенном воздухе, так и снижения.

По результатам наблюдений на других скважинах отмечено, что для большинства скважин характерна относительно стабильная газовая обстановка. Для примера на рисунке 6 представлены результаты газового мониторинга на скважинах 1313 и 1267.

Скважина 1010. По результатам обследования, концентрации метана не превышают фоновых значений на всем участке исследований. Результаты анализов по определению концентрации диоксида углерода в точках наблюдений отображены на рисунке 7.

По представленным на схеме данным можно отметить, что более высокими значениями концентрации CO₂ характеризуется область, прилегающая к эпицентру ПЯВ с южной стороны. В пределах данной области в юго-восточной и юго-западной частях участка четко выделяется две зоны повышенных значений CO₂. Эти зоны можно охарактеризовать как локально проницаемые структуры с повышенным газопереносом. Данная оценка находит подтверждение в результатах геофизических исследований (рисунк 8).

Разрез скважины 1010 слагают переслаивающиеся осадочные породы кояндинской свиты нижнекаменноугольного возраста – песчаники и углисто-глинистые сланцы. По данным сейсморазведки большая часть области включающей зоны дробления и повы-

шенной трещиноватости расположена в юго-восточной и, в меньшей степени, в юго-западной части участка, что, в целом, совпадает с конфигурацией области повышенных значений CO_2 . По данным бурения, именно в этом интервале (300 – 450 м) установлено наибольшее проявление тектоники, что указывает на то, что ПЯВ был проведен в неоднородной толще горных пород с деструктивным воздействием на ослабленные толщи выше его гипоцентра. Достоверность вышеописанной интерпретации существенно повышается данными электроразведки. Геоэлектрическая ситуация в районе скважины № 1010 также свидетельствует о наличии структуры, характеризующейся повышенной продольной проводимостью. Это не что иное, как ослабленная зона, которая восстает в южном и восточном направлениях. Вышеописанные обстоятельства дают основания считать, что установленные ослабленные зоны являются основными проницаемыми структурами для газа и могут являться локальными очагами, где происходят процессы газификации горных пород.

Скважина 1355. Характер распределения диоксида углерода и метана на скважине 1355 представлен на рисунке 9 [23].

По представленным на схеме данным можно отметить, что более высокими значениями концентрации диоксида углерода характеризуется область, прилегающая к эпицентру ПЯВ с северной стороны. В пределах данной области четко выделяется две зоны повышенных значений этого газа. Распределение метана на данной площади имеет локальный характер. Только в 7 точках были получены количественные значения. При этом максимальные концентрации до 14 мг/м^3 были установлены в пределах северо-восточной зоны с повышенными значениями диоксида углерода. Таким образом, выделенные зоны можно охарактеризовать как локально проницаемые структуры с повышенным газопереносом.

Тритий. Помимо вышеперечисленных газов, на участках ряда критических скважин было определено содержание трития в почвенном и атмосферном воздухе [22]. В основу методики отбора проб положена способность водяных паров, содержащихся в воздухе, конденсироваться на поверхности пластин радиатора, охлаждаемой жидким азотом до температуры ниже точки росы. Так как температура пластин радиатора, гораздо ниже 0°C , то контакт водяных паров с поверхностью пластин завершается кристаллизацией. После окончания процесса вымораживания достаточного количества водяных паров, радиатор с хладопроводом извлекали из сосуда Дьюара и по-

мещали для оттаивания в чашку Петри. Пробу объемом не менее 5 мл после оттаивания переносили во флакон, герметизировали и транспортировали для определения содержания трития. Определение концентрации трития в пробах водяных паров проводилось на жидкосцинтилляционном счетчике «ТгіCarb-2900 TR». Результаты лабораторных анализов представлены в таблице 4.

По представленным данным можно отметить, что на всех скважинах, кроме скважины № 1236, концентрация трития в почвенном воздухе выше, чем в атмосферном. Скорее всего, уровень концентрации трития в воздухе зависит от особенностей ПЯВ и степени деформации массива горных пород, поскольку от мощности рыхлых отложений в данном случае зависимости не отмечается. Изучение особенностей характера поступления трития из центральных зон ПЯВ на дневную поверхность необходимо продолжить, поскольку данный фактор можно использовать для оценки газовой проницаемости массива горных пород при проведении газового мониторинга «критических» скважин. Стоит учитывать, что описанный выше метод определения концентрации трития в почвенном и атмосферном воздухе не предполагает учета трития, который может находиться в составе водорода, метана и других углеводородов.

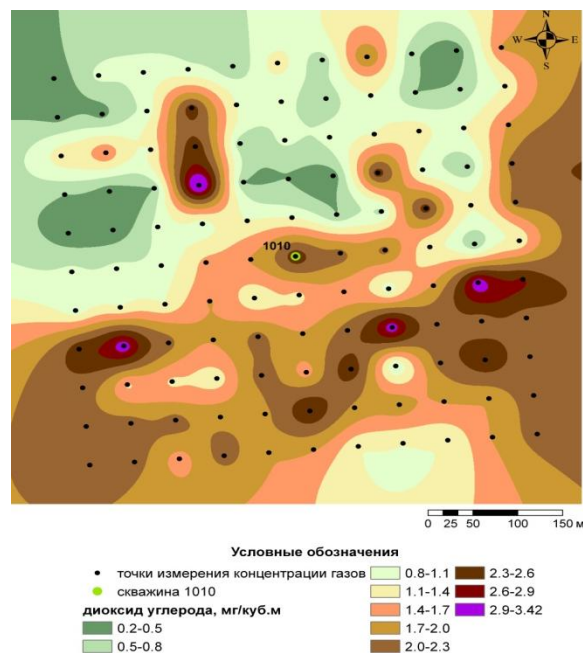


Рисунок 7. Схема распределения концентрации диоксида углерода на участке скважины 1010

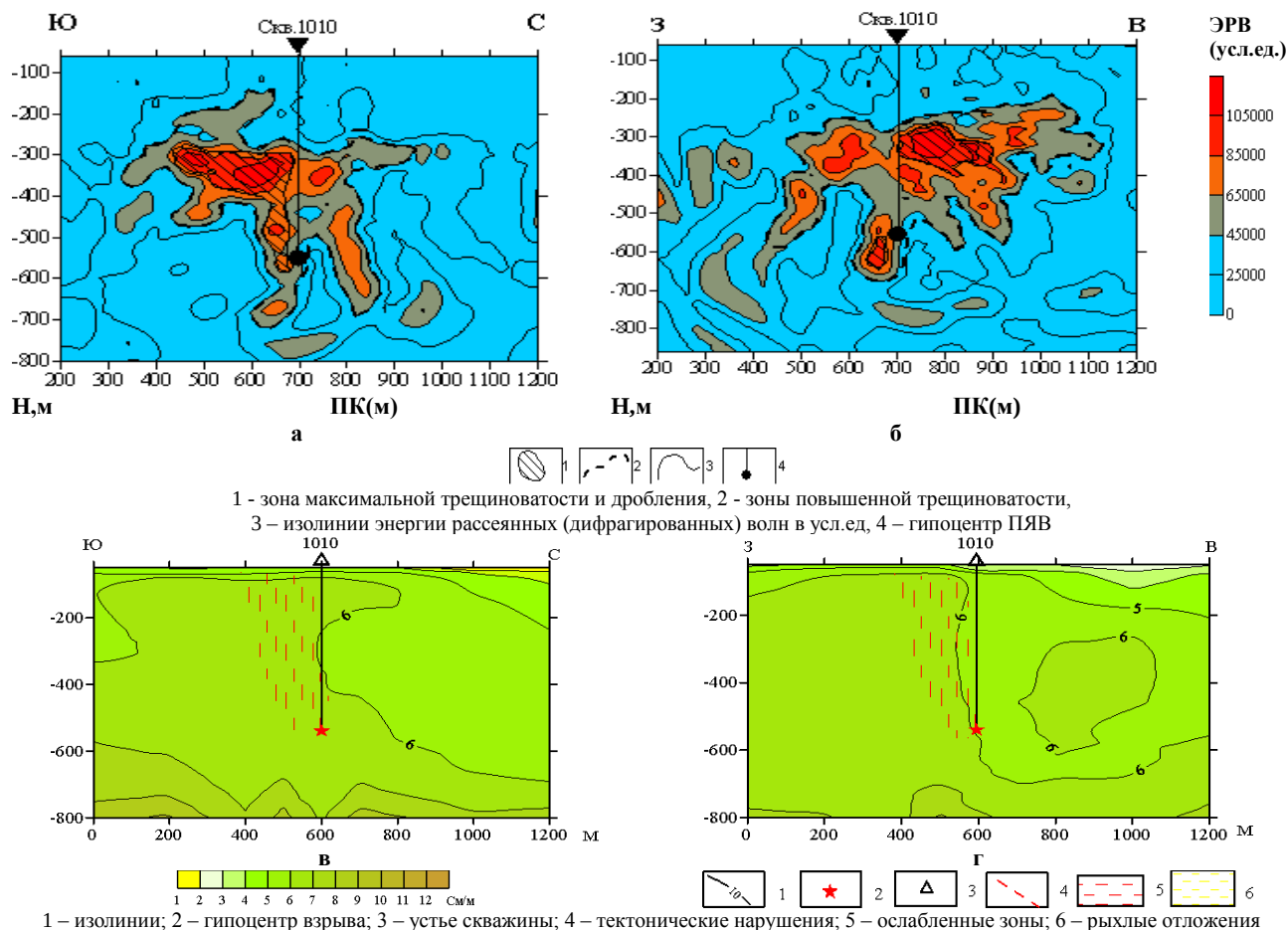


Рисунок 8. Результаты геофизических исследований на скважине 1010. Вертикальные разрезы энергии рассеянных (дифрагированных) волн по данным МДРВ: а – меридиональный; б – широтный. Геоэлектрический разрез кажущейся продольной электрической проводимости по данным ЗСБ: в – меридиональный; г – широтный

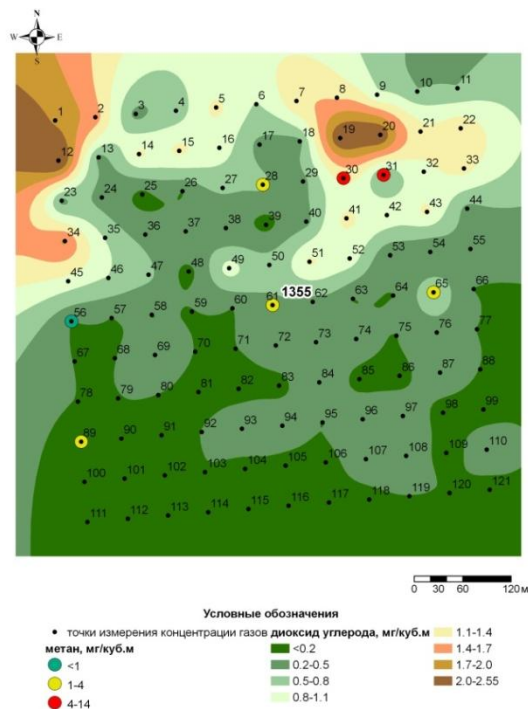


Рисунок 9. Скважина 1355. Площадное распределение диоксида углерода и метана

Таблица 4. Содержание трития в почвенном и атмосферном воздухе

Точка отбора	Дата отбора	^3H , Бк/м ³		$^3\text{H}_{\text{почв}} / ^3\text{H}_{\text{атм}}$
		почвенный	атмосферный	
скв. 1010/1	15.09.2009	$0,4 \pm 0,04$	$0,2 \pm 0,02$	2
скв. 1313/1	15.09.2009	$1,8 \pm 0,1$	$1,4 \pm 0,1$	1,29
скв. 1267/1	16.09.2009	$4,6 \pm 0,4$	$0,6 \pm 0,06$	7,67
скв. 1236/1	16.09.2009	$0,1 \pm 0,01$	$0,35 \pm 0,03$	0,29
скв. 1086/1	16.09.2009	$0,9 \pm 0,09$	$0,3 \pm 0,03$	3
скв. 1061/1	16.09.2009	$0,8 \pm 0,08$	$0,2 \pm 0,02$	4
скв. 1355/1	17.09.2009	$2,6 \pm 0,2$	$2,1 \pm 0,2$	1,24

3. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Одним из основных последствий подземной газификации горных пород является образование в области ПЯВ и увеличение в объеме необрушенных котловых полостей. Об этой опасности свидетельствует катастрофический провал горных пород и взрыв на скважине "Глубокая". Следует понимать, что обрушение котловых полостей может произойти в любой момент и сопровождаться:

- проседанием земной поверхности;
- выбросом газа, взрывом и горением;
- выносом из котловой полости высокоактивных продуктов ПЯВ.

Подобное явление основную опасность представляет для предприятий осуществляющих разработку месторождений полезных ископаемых на площадке «Балапан» (угольного месторождения «Каражыра» и медно-молибденовое месторождение «Арман»). Дело в том, что ближайшие «боевые» скважины находятся примерно в 2 км от границ разрабатываемых месторождений. Обрушение котловых полостей может быть спровоцировано сейсмическими колебаниями от работы горной техники или ведения взрывных работ. При этом любой газовый выброс из скважин может сопровождаться выносом на дневную поверхность радиоактивных продуктов, что при неблагоприятных метеорологических условиях может привести к загрязнению прилегающих территорий и, следовательно, к аварийному облучению населения.

О развитии и разрастании полостей свидетельствуют процессы проседания дневной поверхности на ряде скважин. Так, на скважине № 1355 в 2005 г. была отмечена слабо-бугристая поверхность, а в 2008 г. в 25 м южнее устья скважины зафиксирована воронка, имеющая диаметр около 20 м и глубину – 12 м (рисунок 10).

Полученных данных пока недостаточно, чтобы ответить на вопрос о динамике процесса газификации горных пород, вмещающих центральные зоны ПЯВ. По ряду скважин пока остается открытым вопрос о природе и механизме провальных явлений. Провалы могут происходить либо в результате постепенного заполнения горной породой пространства образованного котловой полостью и столбом обрушения, или в результате разрастания центральной зоны ПЯВ в результате подземной газификации горных пород. В любом случае, поскольку данный процесс продолжается уже более 40 лет, правомерно утверждать, что он будет протекать и в ближайшем будущем. Для прогнозирования процессов, протекающих в котловых полостях ПЯВ, оценки степени опасности и предотвращения возможных чрезвычайных ситуаций требуется разработка и реализация целого комплекса мероприятий.

Исследования показали, что процессы газификации горных пород на площадке «Балапан» продолжают и имеют относительно стабильный характер. Отмечены случаи поствзрывных локальных явлений катастрофического характера. В связи с тем, что на площадке «Балапан» в настоящее время ведется активная хозяйственная деятельность, необходимо провести исследования по оценке сопутствующих процессам подземной газификации горных пород рисков в связи с возможным возникновением пожаров, обрушением котловых полостей ПЯВ и выносом на дневную поверхность законсервированных радиоактивных веществ. Для изучения динамики процесса необходимо организовать круглогодичный газовый мониторинг на всех критических скважинах с периодичностью наблюдений не реже одного раза в месяц.



а – общий вид на участок скважины 1355 с юга, 2005 г.



б – провальная воронка в 25 м южнее устья, 2008 г.



в – то же самое в 2009 г.

Рисунок 10. Площадка «Балапан»

В настоящее время проводятся лабораторные эксперименты по определению состава и концентрации газов методом дегазации воды, отбираемой из наблюдательных скважин. Существует предположение о том, что образующиеся в области полостей ПЯВ газы в значительном количестве растворяются в подземных водах, находящихся на пути его следования. Исследование состава и концентрации газов, растворенных в подземных водах вблизи боевых скважин, позволит получить более информативные данные о процессах подземного горения.

Основной проблемой изучения газоносности территорий проведения ПЯВ на площадке «Балапан» является наличие чехла рыхлых отложений мощностью до 90 м. Рыхлые отложения, такие как глины и суглинки, препятствуют выходу газов на дневную поверхность. Наиболее эффективным методом газового мониторинга могут являться наблюдательные скважины, пробуренные до кровли коренных пород. При этом использование буровых скважин будет более эффективным, если они будут пробурены в местах максимальной газоносности. Для этого в эпицентральных зонах ПЯВ необходимо установить аномалии повышенного газовыделения. Результаты исследований показали, что структуры газовыделения могут находиться на расстояниях более 100 м от устьев «боевых» скважин. Поскольку повышенное газовыделение и теплоперенос происходит по одним и тем же проницаемым структурам, в этой связи целесообразно на всех «газящих» скважинах провести ртутнометрическую, тепловую и газовую съемку.

Математическое моделирование. Самостоятельный интерес представляет задача построения математической модели для количественной оценки воздействия подземных ядерных взрывов на процессы тепломассопереноса в земной коре. Предложенная

на стыке смежных наук (геология, механика деформирования и разрушения, физика и химия горения), модель может быть применима для решения прогнозных задач, связанных с оценкой возникновения и пространственно-временного характера развития процессов подземной газификации горных пород, в зависимости от особенностей структурно-тектонического строения массива горных пород.

Выводы

Процессы газификации горных пород в местах расположения выявленных «критических» скважин на площадке «Балапан» продолжают и имеют относительно стабильный характер. Особое внимание стоит уделить состоянию скважины № 1010.

В связи с тем, что процессы газификации горных пород в местах проведенных ПЯВ на СИП связаны с возможным возникновением явлений катастрофического характера, необходимо продолжить исследования по организации эффективного мониторинга, а так же решения прогнозных задач, связанных с оценкой пространственно-временного характера их развития, в зависимости от особенностей структурно-тектонического строения массива и состава горных пород.

Судя по тому, что на выявленных «критических» скважинах имеет место существенное различие в составе и концентрации газов, правомерно утверждать, что в проходящих процессах газификации большое значение имеют особенности геологического строения и гидрогеологических условий. Проблема дальнейшего изучения этого вопроса осложнена тем, что в настоящее время в Казахстане нет материалов по геологическому строению испытательных площадок СИП.

ЛИТЕРАТУРА

1. Инженерно-геологические условия объекта 905 МО СССР: отчет о результатах инженерно-геологической съемки масштаба 1:200000 / рук. Бардина И.Ю.; исполн.: Ветрова С.И. [и др.]. – 1976.
2. Геологическое строение, гидрогеология и инженерно-геологические условия пл. "Б": отчет за 1975 г. / рук. Бардина И.Ю. [и др.].
3. Субботин, С.Б. Оценка возможностей протекания процессов катастрофического характера на площадке «Балапан» / С.Б. Субботин а // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сборник трудов Института радиационной безопасности и экологии за 2007-2009 гг.] / под ред. С.Н.Лукашенко. – Вып.2.- Павлодар : ТОО "Дом печати", 2010. – С. 401-450. – Библиогр.: С. 447-448. – ISBN 978-601-7112-28-8.
4. Семипалатинский испытательный полигон. Создание, деятельность, конверсия / кол. авторов под рук. В.С. Школьника. - А.: Казахстан, 2003.
5. Броуд, Г.Л. Действие ядерного взрыва. В кн.: Действие ядерного взрыва / Г.Л. Броуд. - М., 1971. - С. 153 – 202.
6. Coleburn, N.L. Huguenot Equation of State Several Uncreated Explosives / N.L. Coleburn, T.P. Liddiard // J. Chem. Phys. – 1966. - V.44. - N5. - P. 1929-1936.
7. Glasstone, S. Publish Safety and Underground Nuclear Detonations / S. Glasstone. – Washington: U.S. Atomic Energy Commis, 1971. - 276 p. (TID – 25708).
8. Duff, R.E. The Chemistry of Gassbuggy Chimney / R.E. Duff, L.M. Shalit // Nuclear Technol. – 1971. - V.11. - N3. - P. 390-399.
9. Derlich, S. Underground Nuclear Explosion Effects in Granite Rock Fracturing / S. Derlich // In: Proc. Symp. on Engineer. with Nuclear Explosives, Las Vegas, Nevada, January 14-16, 1970. - Washington, 1970. - P. 505-518 (conf. 700101 (v.1)).
10. Обеспечение Безопасности Бывшего Семипалатинского Испытательного Полигона Республиканская Бюджетная программа 011 «Обеспечение радиационной безопасности»: отчет о НИР /ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Лукашенко С.Н. – Курчатова: ИРБЭ НЯЦ РК, 2006. - 66 с.

11. Бусыгин, В.П. Многолетние теплорадиационные эффекты подземных ядерных взрывов и их экологический контроль / В.П. Бусыгин, А.И. Андреев, М.В. Щилецов // Наука и общество: история советского атомного проекта: тез. докладов междунар. симпозиума, 14-17 мая. – Дубна, 1996. -253 с.
12. Бусыгин, В.П. Остаточные теплорадиационные проявления в откольной зоне подземного ядерного взрыва / В.П. Бусыгин, А.И. Андреев, С.А. Косолапов [и др.] // Обнаружение и мониторинг подземных ядерных взрывов и землетрясений: докл. на междунар. симпозиуме. - М., 1997. – С. 17-21.
13. Израэль, Ю. А. Мирные ядерные взрывы и окружающая среда / Ю. А. Израэль. - Л.: Гидрометеиздат, 1974. – С. 136 с.
14. Нифонтов, Б. И. Подземные ядерные взрывы / Б. И. Нифонтов [и др.]. - М.: Атомиздат, 1965.
15. Taylor R. W. Thermal effects of underground nuclear explosions / R. W. Taylor // Nuclear Technology. - V. 18. - 1973. - P. 185-193.
16. Калечица, И.В. Химические вещества из угля / Калечица И.В. – М.: Химия, 1980.
17. Химическая энциклопедия. Т. 1. - М.: Советская энциклопедия, 1988.
18. ГОСТ 12.1.014-84. Метод измерения концентрации вредных веществ индикаторными трубками.
19. Газоанализатор ВТИ-2 Инструкция по эксплуатации. Центральное бюро технической информации. – Москва, 1965.
20. Аспиратор для отбора и хранения проб газа : Техническое описание. - В/О: «Машприбор».
21. Обеспечение Безопасности Бывшего Семипалатинского Испытательного Полигона Республиканская Бюджетная программа 011 «Обеспечение радиационной безопасности» : отчет о НИР (итоговой отчет) по договору № 36 – 2008/1от 10102008г. / ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Лукашенко С.Н. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2008. -159с.
22. Обеспечение Безопасности Бывшего Семипалатинского Испытательного Полигона Республиканская Бюджетная программа 011 «Обеспечение радиационной безопасности» : отчет о НИР (информационный) по договору № 17-2009 от 26.06.2009г. /ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Лукашенко С.Н. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2009. -164с.
23. Обеспечение Безопасности Бывшего Семипалатинского Испытательного Полигона Республиканская Бюджетная программа 011 «Обеспечение радиационной безопасности» : отчет о НИР (информационный) по договору № 4 – 2010/3 от 19.02.2010г. / ИРБЭ НЯЦ РК; рук. Лукашенко С.Н. – Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2010. -156с.

«БАЛАПАН» АЛАҢЫНДАҒЫ АПАТТЫҚ СИПАТТАҒЫ ҮРДІСТЕР АҒЫСЫНЫҢ МҮМКІНДІГІН БАҒАЛАУ

¹Субботин С.Б., ¹Лукашенко С.Н., ¹Генова С.В., ¹Романенко В.В., ²Русинова Л.А., ²Дроздов А.В., ³Чернова Л.М.

¹ҚР ҰЯО Радиациялық қауіпсіздік және экология институты, Курчатов, Қазақстан

²ҚР ҰЯО Геофизикалық зерттеулер институты, Курчатов, Қазақстан

³ҚР ҰЯО Атом энергиясы институты, Курчатов, Қазақстан

Бұл мақалада тау жыныстарының жерасты газдану процестерімен және отырықшы көріністермен байланысты жерасты ядролық жарылыстардың (ЖЯЖ) зардабын зерттеу нәтижелері берілген. ЖЯЖ орталық аймақтары орналасқан, тау жыныстарының қатпарларынан жердің бетіне шығатын газдардың шоғырлануын және құрамын зерттеу бойынша нәтижелер ұсынылды. ЖЯЖ эпицентралды аймақтарындағы ұзақ мерзімді геотермалды белсенділіктің қалдықты көріністеріне байланысты қауіптілік мәніне, апаттық сипаттағы жергілікті үрдістер сипатындағы баға берілді. Сонымен қатар бірқатар ұңғымалардағы ойық көріністер анықталды, эпицентралды аймақтарға жасалған топографиялық мониторинг деректері бойынша олардың қарқыны жайлы алғашқы деректер алынды.

ASSESSMENT OF POSSIBILITIES FOR CATASTROFIC EVENTS OCCERENCE AT BALAPAN SITE

¹S.B. Subbotin, ¹S.N. Lukashenko, ¹S.V. Genova, ¹V.V. Romanenko, ¹L.A. Rusinova, ²A.V. Drozdov, ³L.M. Chernova

¹Institute of Radiation Safety and Ecology NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

²Institute of Geophysical Research RK, Kurchatov, Kazakhstan

³Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article presents the results of studies of the effects of underground nuclear explosions (UNE) related on the subsidence phenomena and processes of underground gasification of rocks. The results of the study of the composition and concentration of gases emitting from the blocks of rock surrounding the central zone of UNE, to the surface, are given. The significance of the hazards related with the residual effects of long-term manifestations of geothermal activity in the epicentral areas of UNE as local processes of catastrophic nature. Also, for the first time there are presented data on the results of topographical monitoring, which allowed to find information about the disastrous phenomena and their dynamics in a number of wells.

УДК 621.039.68

ИССЛЕДОВАНИЕ КАЧЕСТВА ИЗГОТОВЛЕННЫХ В АО "УМЗ" МАКЕТОВ ПЕРВОЙ СТЕНКИ РЕАКТОРА ИТЭР

Бакланов В.В., Дерявко И.И., Коянбаев Е.Т., Кукушкин И.М., Саблук В.В., Ударцев С.В.

Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

При проведении термических испытаний пробной партии макетов первой стенки ИТЭР, изготовленных в Усть-Каменогорском АО "УМЗ" с использованием простых и недорогих методик горячей штамповки, выявлены низкие показатели адгезионной прочности у этих трехслойных (бериллий–бронза–сталь) изделий. Послеэкспериментальными материаловедческими исследованиями состояния макетов выяснено влияния технологии изготовления макетов на адгезионную прочность соединений в этих составных изделиях и установлены причины их разрушений по границе между бериллием и бронзой.

ВВЕДЕНИЕ

Первая стенка термоядерного реактора ИТЭР будет изготовлена в виде трехслойной конструкции из специально подобранных материалов [1]. Первый (защитный) слой изготавливается из бериллия; этот слой воспринимает тепловое и γ -излучение, а также все корпускулярные потоки из плазмы (нейтроны, ионы, атомы, электроны). Второй (теплоотводящий) слой изготавливается из бронзы (Cu-сплава), а третий – из нержавеющей стали. Конструкция первой стенки предполагает прочное соединение слоев разнородных материалов в единую композицию, причем для соединения бериллия с бронзой это не только требование механической прочности, но и требование идеального теплового контакта.

В связи с отмеченным встает вопрос о стойкости соединений между слоями стенки в условиях термических воздействий выше установленных пределов, при аварийном охлаждении или его отсутствии, а также при возникновении напряжений, появляющихся вследствие неоднородности температурных полей, при нештатном поведении плазменного шнура или других электродинамических нагрузках. В этих условиях возможны разрушения, проплавления, расслоения элементов первой стенки, выход теплоносителя или его паров в полость вакуумной камеры, что может привести к длительному останову реактора.

Ясно, что изготовление прочной трехслойной конструкции является достаточно сложной технологической задачей. При тепловых потоках на бериллиевый слой порядка $0,5 \text{ МВт/м}^2$ простого механического прижима бериллиевой облицовки к бронзовой подложке не достаточно, бериллиевые плитки могут перегреться и расплавиться. Клеевые соединения использовать нельзя в связи с радиационными, вакуумными и прочими особенностями эксплуатации. Пригодны лишь соединения металлургического типа, когда адгезия между двумя разнородными материалами обеспечивается расплавлением одного или обоих соединяемых материалов, либо в зазор добавляется расплав третьего материала или вкладываются различного типа промежуточные прокладки (как, например, в [2, 3]), либо же обеспечивается диффузионное взаимодействие сопрягаемых материалов.

К настоящему времени уже опробованы различные технологии изготовления подобных соединений: технология газостатического прессования, технология горячего вакуумного прессования, быстрая электронно-лучевая пайка с припоем [4, 5] и др. При этом удавалось получать вполне приемлемые результаты по прочности соединений. Например, для изготовления соединения бериллия с медным сплавом по методике [2] использовался так называемый «порошковый градиент» (эта промежуточная прокладка готовилась из четырех смесей порошков бериллия и бронзы, которые содержали 72, 58, 44 и 30 % (об.) бериллия). Спрессованный брикет указанных смесей помещался между свариваемыми поверхностями заготовки таким образом, чтобы его сторона с наибольшим содержанием бериллия была обращена к бериллию. Далее проводилось либо горячее изостатическое прессование, либо вакуумное горячее прессование, либо жидкофазное спекание или диффузионная сварка при температуре от 500 до 800°C. Полученные при этом соединения имели прочность на разрыв более 350 МПа.

При изготовлении подобного соединения бериллия с медью по методике [3] использовалась промежуточная прокладка, изготовленная из смеси порошков бериллия и меди (содержание меди в смеси было не менее 50 % (ат.)). Порошковая смесь подвергалась одноосному прессованию при 600°C и давлении 6,9 МПа в течение 3 ч, а затем горячему изостатическому прессованию при 600°C и давлении 192 МПа в течение 2 ч. Полученная прокладка и свариваемые поверхности бериллия и меди полировались, собирались в сборку и подвергались горячему изостатическому прессованию при 600 °C и давлении около 150 МПа. Соединения имели прочность на разрыв более 245 МПа.

В Усть-Каменогорском АО "УМЗ" отработывалась технология изготовления соединений без промежуточных слоев [6]. Наилучшие результаты были получены при горячем изостатическом (величиной около 100 МПа) прессовании нержавеющей стали с медью при 900°C и меди с бериллием при 750°C: прочность на разрыв соединения стали с медью составила 230 МПа, а соединения бериллия с медью – 90 МПа. При использовании технологии диффузионной свар-

ки в вакууме с натягом достигнуты прочности на разрыв у соединений стали с медью и бериллия с медью, равные соответственно 162 и 118 МПа.

Необходимо отметить, что указанные технологии являются дорогостоящими, трудозатратными, сложными в реализации и требующими уникального оборудования (установки для газостатического прессования, вакуумные печи горячего прессования, специальные электроннолучевые установки и т.п.). Поэтому в АО "УМЗ" была начата отработка технологии изготовления трехслойных (бериллий–бронза–сталь) изделий методом горячей штамповки. Данная технология одноосного прессования является более экономичной в сравнении с вышеуказанными, более проста в реализации и не требует сложного оборудования. А в случае получения положительных результатов термических и термоциклических испытаний изделий (макетов первой стенки ИТЭР), полученных указанным способом, эта технология могла бы стать альтернативой той технологии изостатического прессования, которая принята в основной концепции изготовления первой стенки (ПС) реактора ИТЭР.

В связи с этим в 2007-2008 годах пробная партия макетов ПС в количестве 3 штук, изготовленных в АО "УМЗ" горячей штамповкой, прошла термические и термоциклические испытания в ИАЭ НЯЦ РК, а в 2008 году там же были выполнены материаловедческие исследования послеэкспериментального состояния этих макетов. Рассмотрение и анализ результатов этих материаловедческих исследований как раз и являются предметом настоящей работы.

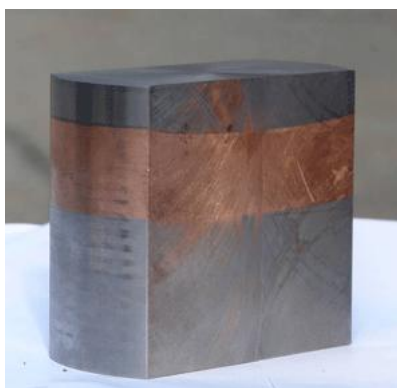
ОБЪЕКТ ИСПЫТАНИЙ

Изготовленные в АО "УМЗ" макеты ПС представляли собой фрагменты первой стенки ИТЭР, находящиеся в хорошем соответствии с реальной конструкцией фрагмента первой стенки этого реактора. Все три макета ПС имели одинаковые габаритные размеры (100×50×81 мм) и одинаковое исполнение патрубков и трубок системы охлаждения. В каждом макете ПС первый слой толщиной 10 мм изготовлен из бериллия марки ТГП-56, второй слой толщиной 22 мм – из никель-бериллиевой бронзы марки

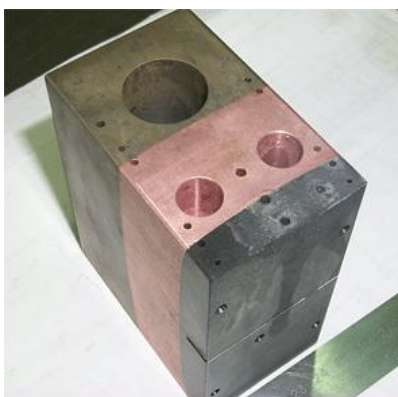
С17510, а третий слой толщиной 49 мм – из нержавеющей стали марки 12Х18Н10Т. В слой бронзы запрессованы стальные трубки. В стальном слое изготовлено отверстие Ø24 мм, к выходам которого приварены стальные патрубки Ø28×4 мм (патрубки и трубки обеспечивают возможность последующего приваривания к ним штуцерных соединений, позволяющих коммутировать макет ПС с системой охлаждения установки термических испытаний ВПЧ-100). Для измерения температурных полей в каждом макете ПС предусмотрены 32 отверстия Ø1,5 мм под термопары типа ХА.

В качестве примера на рисунке 1 показаны отдельные моменты изготовления одного из макетов и подготовки его к испытаниям. Полученную прессованием цилиндрическую трехслойную заготовку обрезают до размеров 100×50×81 мм (на рисунке 1а показана заготовка после отторцовки и срезания двух лысок), затем изготавливают горизонтальную прорезь в бериллиевом слое, 3 отверстия для системы охлаждения и 32 отверстия для системы термометрирования (рисунок 1б), а затем приваривают патрубки подвода воды и запрессовывают трубки охлаждения (рисунок 1в).

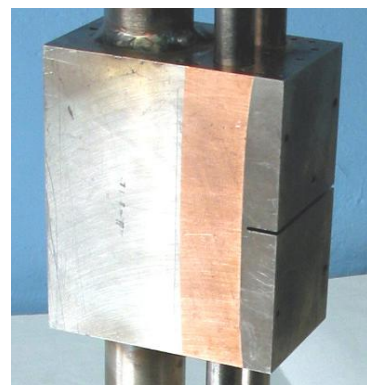
Все три макета ПС изготавливались в целом по технологии горячей штамповки, но при ее реализации для каждого из макетов использовались (таблицу 1) различающиеся приемы и методики: одновременное прессование трехслойной заготовки (как в первом макете), прессование сначала двухслойной заготовки, а затем ее совместное прессование с третьим слоем (как в третьем макете), соединение первых двух слоев без прессования (как во втором макете), прессование в контейнере или без контейнера; варьировались температуры, давления и длительности прессования; в двух из трех макетов созданы дополнительные замковые соединения между слоями, в которых стальной слой охватывал бронзовый, а бронзовый слой или охватывал бериллиевый или охватывался бериллиевым. Все это было направлено на поиски оптимального варианта создания простыми приемами прочного трехслойного изделия.



а



б



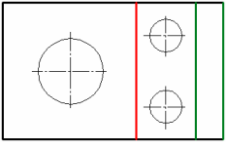
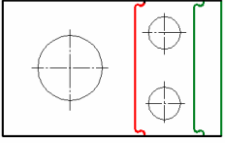
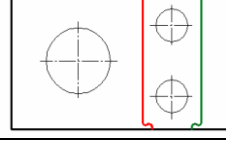
в

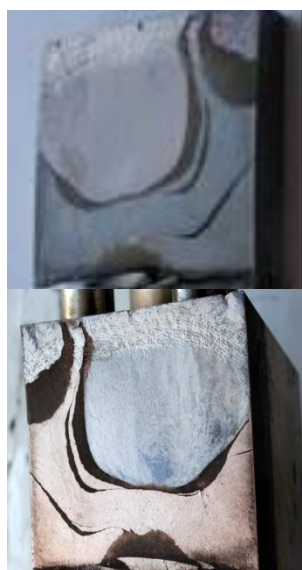
Рисунок 1. Заготовка первого макета ПС (а), изготовленный макет (б) и макет, подготовленный к термическим испытаниям (в)

Результаты выполненных в индукционной установке ВПЧ-100 испытаний макетов выявили [7-9] невысокие показатели адгезионной прочности и ресурсной стойкости у всех макетов ПС (в экспериментах происходило показанное на рисунке 2 разрушение макета по материалу переходного диффузионного слоя на границе бериллия с бронзой с частичным или полным отделением бериллиевого слоя от макета). Низкая ресурсная стойкость макетов ПС, изготовленных горячей штамповки, выразилась в том, что первый макет выдержал только восемь полномасштабных циклов испытаний на термочувствительность, второй – сорок циклов, а третий – всего лишь один цикл. Для проверки и уточнения этого факта были выполнены дополнительные термоциклические испытания цилиндрических трехслойных образцов диаметром 14 мм, выточенных из материала периферийных областей (лысок) исходных заготовок макетов.

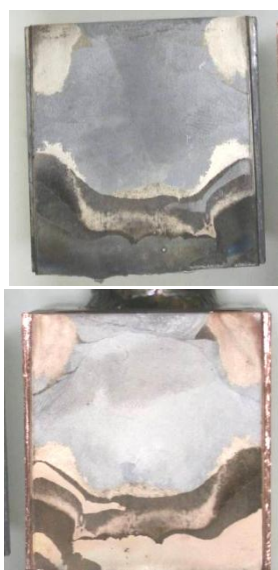
Испытания трехслойных образцов заключались в их циклическом нагреве от комнатной температуры до температуры $\sim 700^\circ\text{C}$ за время примерно 2,5 мин с последующим естественным охлаждением в течение ~ 10 мин. Нагрев проводился в графитовой ампуле, расположенной в поле цилиндрического индуктора установки ВПЧ-100. Испытаний показали, что ресурсная стойкость у трехслойных образцов хотя и оказалась заметно выше, чем у макетов ПС (что обусловлено, прежде всего, заметным влиянием размерного фактора), но все же является очень низкой: образцы, изготовленные из лысок первого макета, выдерживали до 35 циклов нагрева и охлаждения (после чего бериллий отслаивался от бронзы), образцы, изготовленные из лысок второго макета, – до 150 циклов, а образцы, изготовленные из лысок третьего макета, – до 7 циклов.

Таблица 1. Особенности изготовления каждого из трех макетов ПС

Номер макета	Вид соединения слоев в макете	Параметры диффузионной сварки стали и бронзы	Параметры диффузионной сварки бронзы и бериллия
Первый макет		Одновременная диффузионная сварка слоев стали, бронзы и бериллия одноосным прессованием при температуре слоев около 1050°C и давлении 12 МПа без выдержки под давлением	
Второй макет		Диффузионная сварка стали и бронзы при начальной температуре 1070°C без прессования (сварка слоев осуществлялась за счет контакта стали с жидким расплавом бронзы, охлаждение происходило на воздухе)	Диффузионная сварка бронзы и бериллия одноосным прессованием в контейнере при температуре 810°C и давлении порядка 20-25 МПа с выдержкой под давлением в течение 8 с и охлаждением под весом верхней траверсы пресса в течение ~ 18 ч
Третий макет		Диффузионная сварка стали и бронзы одноосным прессованием в контейнере при температуре 1040°C и давлении порядка 10-15 МПа без выдержки под давлением (охлаждение после снятия давления осуществлялось на воздухе)	Диффузионная сварка бронзы и бериллия одноосным прессованием при температуре 810°C и давлении порядка 20-25 МПа с выдержкой под давлением в течение 10 с и охлаждением под весом верхней траверсы пресса в течение ~ 18 ч



Первый макет ПС



Второй макет ПС



Третий макет ПС

Рисунок 2. "Бериллиевые" (верхний ряд) и "бронзовые" (нижний ряд) поверхности разрушения макетов ПС

Материаловедческие исследования состояния макетов ПС однозначно показали [10], что самым проблемным участком во всех макетах является участок переходной зоны между слоями бериллия и бронзы; этому участку и было уделено наибольшее внимание.

СОСТОЯНИЕ ПЕРВОГО МАКЕТА

Осмотр поверхностей разрушения первого макета ПС (рисунок 2) позволил визуально установить, что разрушение произошло по некоторым промежуточным слоям материалов, цветовые оттенки которых отличались от цветовых оттенков и бериллия, и бронзы. При металлографическом изучении структуры материала поверхности разрушения оказалось, что на кромке поверхности поперечного разреза бериллиевого образца легко выявляется (рисунок 3) промежуточный слой, отличающийся повышенной твердостью, что связано, по-видимому, с наличием в нем интерметаллидов. Этот слой содержит четыре подслоя, а его максимальная толщина составляет, по результатам измерения микротвердости, около 50 мкм (следует отметить, что толщина промежуточного слоя, выявленная на кромке поверхности поперечного разреза бронзового образца, оказалась примерно вдвое большей).

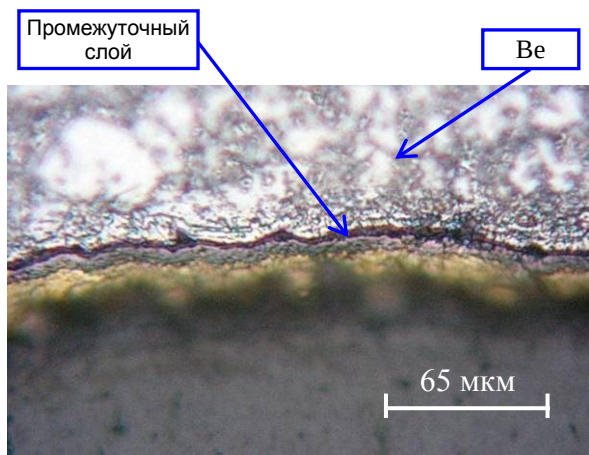


Рисунок 3. Микроструктура бериллия вблизи поверхности разрушения (не травлено)

В материале, взятом с "бериллиевой" поверхности разрушения, дифрактометрически обнаруживались, кроме линий α -Be и BeO, линии интерметаллида Be_2Cu . Интенсивность линий этой фазы очень низкая, причем она была выше на участках поверхности, имеющих золотистый оттенок. В материале, взятом с "бронзовой" поверхности разрушения, основными фазами являлись γ -BeCu и α -Cu, а линии интерметаллидной фазы Be_2Cu малой интенсивности уверенно обнаруживались на дифрактограммах только светлых участков поверхности разрушения. Отсюда следует, что разрушение первого макета ПС в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой произошло по месту залегания подслоя интерметаллидной фазы Be_2Cu .

Таким образом, причины разрушения первого макета ПС связаны с возникновением в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой интерметаллидных фаз, охрупчивающих материал этого переходного слоя, что при термических испытаниях создавало условия для возникновения трещин под влиянием термических напряжений, обусловленных различием в коэффициентах линейного расширения у матричных и интерметаллидных фаз.

Для исследования материалов переходного слоя между бронзой и сталью на образце, вырезанном из бронзово-стального фрагмента первого макета ПС, был изготовлен шлиф, протравленный затем в водном растворе хлорного железа для выявления макроструктуры в его бронзовой части (рисунок 4).

На этом рисунке хорошо видна текстурованность (сильная вытянутость) зерен бронзы в периферийной области макета, возникающая при продольном пластическом течении материала (в направлении от центра этого слоя к его периферии) в процессе поперечного одноосного прессования. Наличие кристаллографической текстуры в периферийных областях бронзового слоя было подтверждено рентгенографическими измерениями.

В стальном слое макета были обнаружены макротрещины, распространяющиеся в материал этого слоя на глубину до 7 мм. Трещины заполнены материалом, сходным по цвету с материалом бронзы, следовательно, образование трещин и их заполнение бронзой произошло еще на стадии изготовления макета.



Рисунок 4. Макроструктура бронзы в первом макете ПС (периферия макета слева)

В самом материале бронзового слоя отчетливо наблюдались пластинчатые и игольчатые дисперсные выделения материала, заметно отличающегося по цвету от матричного. Оценочная толщина выделений второй фазы составляла около 0,2 мкм, а их длина находилась в пределах 2 мкм. Наблюдались также и более длинные волокнистые образования той же толщины, а также крупные выделения второй фазы произвольной формы, как правило, окруженные некоторой "зоной отчуждения", где мелкодисперсные включения отсутствуют (рисунок 5). Характер распределения и размеры выделений второй фазы позволяли говорить о том, что материал бронзового слоя первого макета ПС находился в перестаренном состоянии.

Из рентгенографических данных следовало, что в материале бронзового слоя, кроме фазы α -Cu, присутствует интерметаллидная фаза NiBe (исходный состав бронзы С17510: Cu – 97,5 %, Ni – 1,85 %, Be – 0,53 %, остальное – примеси). Микротвердость материала бронзового слоя макета составила 1,13 ГПа, в то время как микротвердость материала эталонного образца бронзы марки С17510 достигала только 0,86 ГПа.

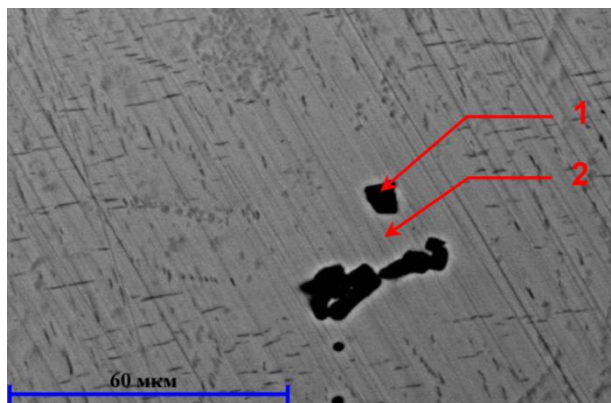


Рисунок 5. Микроструктура бронзы в первом макете ПС (1 и 2 – выбранные участки элементного анализа)

Таким образом, в процессе изготовления макета произошло заметное – примерно на 30 % – повышение твердости бронзы, обусловленное процессами выделения интерметаллидной фазы NiBe. При проведении элементного анализа на растровом электронном микроскопе было получено подтверждение того, что выделения второй фазы в бронзе имеют повышенное содержание никеля: на рисунке 6 верхний спектр относится к анализу материала включения, а нижний – материала бронзовой матрицы.

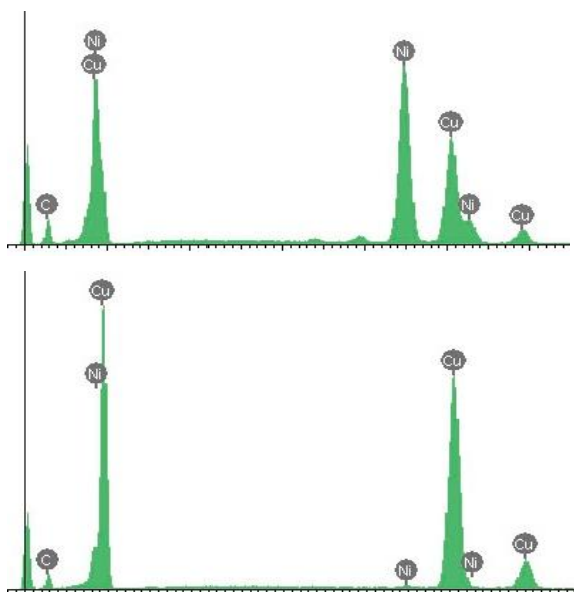


Рисунок 6. Сопоставление данных элементного анализа в точках 1 и 2 материала, показанного на рисунке 5

СОСТОЯНИЕ ВТОРОГО МАКЕТА

Наиболее детально было проведено изучение состояния материалов на границе бериллия с бронзой. Было выполнено рентгенографирование материалов, взятых с одних и тех же (рисунок 7) четырех участков поверхностей разрушения на бериллиевом и бронзово-стальном фрагментах второго макета ПС.

Фазовый анализ (таблицу 2) показал, что в исследованных материалах, кроме основных фаз, присутствуют вторые фазы в виде интерметаллических соединений Be_2Cu и γ -BeCu, причем в материале "бериллиевой" поверхности разрушения содержание фазы Be_2Cu в целом больше содержания фазы γ -BeCu, а в материале "бронзовой" поверхности разрушения это соотношение меняется на обратное.

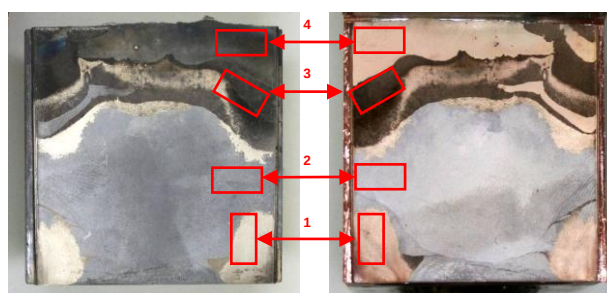


Рисунок 7. Участки анализа на "бериллиевой" (слева) и "бронзовой" (справа) поверхностях разрушения макета

Таблица 2. Фазовый состав материала на поверхностях разрушения второго макета ПС

Участок анализа	Основные фазы (слева) и вторые фазы (справа) на "бериллиевой" и "бронзовой" поверхностях разрушения	
Бериллий-1	α -Be, BeO	γ -BeCu, Be_2Cu
Бериллий-2	α -Be, BeO	Be_2Cu
Бериллий-3	α -Be, BeO	Be_2Cu , γ -BeCu
Бериллий-4	α -Be, BeO	Be_2Cu
Бронза-1	α -Cu(Be)	γ -BeCu
Бронза-2	α -Cu(Be)	γ -BeCu, Be_2Cu
Бронза-3	α -Cu(Be)	γ -BeCu
Бронза-4	α -Cu(Be)	γ -BeCu

В таблице 2 вторые фазы в материале "бериллиевой" поверхности разрушения обозначены как фаза γ -BeCu и фаза переменного состава Be_{2+x}Cu , формульный состав которой на основании измерений периода решетки можно было обозначать и как Be_{2+x}Cu , и как Be_{2-x}Cu . В частности, на участке-2 присутствовала фаза Be_{2+x}Cu , а на участке-1, участке-3 и участке-4 присутствовали одновременно и фаза Be_{2+x}Cu , и фаза Be_{2-x}Cu . Вторые фазы в материале "бронзовой" поверхности разрушения формально представлены теми же фазами γ -BeCu и Be_{2+x}Cu , при этом формульный состав последней фазы в соответствии со сделанным выше замечанием следует конкретизировать как фазу Be_{2-x}Cu .

Таким образом, в материале переходного диффузионного слоя между бериллием и бронзой у второго макета ПС была установлена следующая последовательность структурных подслоев:



В дальнейшем из фрагмента второго макета ПС, содержащего неотделившуюся часть бериллиевого слоя, был вырезан бериллиево-бронзовый образец для металлографического изучения структуры переходного диффузионного слоя между бериллием и бронзой. Анализ шлифа этого образца позволил установить, что общая толщина анализируемого слоя возрастает от периферии к центру макета, а также то, что металлографически удастся четко наблюдать многослойность строения переходного слоя (четыре подслоя на рисунке 8).

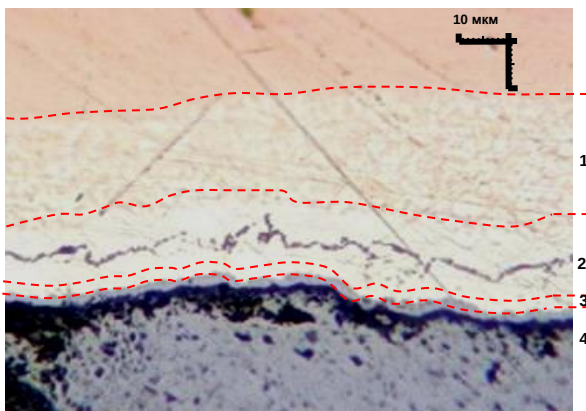


Рисунок 8. Микроструктура материалов второго макета ПС в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой

Ближайшим к бронзе является подслои-1 толщиной около 25 мкм, состоящий из смеси фаз $\alpha\text{-Cu}(\text{Be})$ и $\gamma\text{-BeCu}$ и имеющий микротвердость в диапазоне 2,5-2,7 ГПа. Следующий подслой-2 фазы $\gamma\text{-BeCu}$, имеющий толщину ~15 мкм, разделен по середине неровной серой границей толщиной порядка 1 мкм. Микротвердость фазы $\gamma\text{-BeCu}$ с обеих сторон от неровной границы примерно одинаковая и лежит в диапазоне значений 3,2-3,7 ГПа. Микротвердость материала следующего светло-серого подслоя-3 (предположительно это фаза Be_{2-x}Cu) установить не удалось ввиду его малой толщины (~2 мкм).

Следующий темно-серый (почти черный) подслой-4 (предположительно это фаза Be_{2+x}Cu) надежно фиксируется лишь при приближении к центру макета. Наибольшей толщины (до 15 мкм) этот подслой достигает в центре макета. В этих же областях предыдущий подслой-3 практически полностью исчезает. Далее подслой-4 переходит в достаточно толстый (порядка 100 мкм) подслой-5 (на рисунке 8 он не обозначен) темно-серого цвета из смеси фаз Be_{2+x}Cu и $\alpha\text{-Be}(\text{Cu})$.

Важно отметить, что во втором макете ПС между подслоем-4 и подслоем-5 часто обнаруживается отсутствие материала, т.е. имеет место частичное от-

слоение "бериллия" от "бронзы". Это означает, что во втором макете, как и в первом, разрушение в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой происходит по месту залегания подслоя интерметаллидной фазы Be_2Cu . Причины этого разрушения те же, что и в первом макете: возникновением термических напряжений из-за различий в коэффициентах линейного расширения у матричных и интерметаллидных фаз.

Была предпринята также попытка исследования состояния материалов второго макета ПС на границе бронзы со сталью. Однако при изготовлении образца из бронзово-стального фрагмента макета произошло отслоение бронзового слоя от стального (было замечено при этом, что поверхность разрушения на бронзе выглядела окисленной, а поверхность разрушения на стали содержала цвета побежалости). Отслоение бронзы от стали указало на полную несостоятельность использованного при изготовлении этого макета технологического приема диффузионной сварки без прессования (таблицу 1), т.е. только путем контакта стального слоя с расплавом бронзы.

В дальнейшем подготовленный бронзовый образец был использован для выяснения состояния структуры бронзы в этом макете (рисунок 9).



Рисунок 9. Макроструктура бронзы во втором макете ПС (периферия макета слева)

Из этого рисунка видно, что материал бронзового слоя обладает крупнокристаллическим строением в периферийных областях макета и существенно более мелкокристаллическим в его центре. Значительной текстуры в бронзовом слое не обнаружено ни по форме зерен, ни по данным рентгеноструктурного анализа; результат измерения микротвердости (1,09 ГПа) указали на то, что материал находится в состаренном состоянии.

СОСТОЯНИЕ ТРЕТЬЕГО МАКЕТА

Для изучения состояния материалов переходного диффузионного слоя между бериллием и бронзой из бериллиевого и бронзово-стального фрагментов третьего макета ПС (рисунок 2) были вырезаны образцы отдельно для рентгеновских и для металлографических исследований. Из результатов совместного рентгенографического и металлографического анализа материалов поверхностей разрушения следовало, что на "бериллиевой" поверхности разрушения находится тонкий (около 5 мкм) слой фазы Be_2Cu . На "бронзовой" поверхности разрушения ближайшим к бронзе является подслой фазы $\alpha\text{-Cu}(\text{Be})$ с повышенным содержанием бериллия. Толщина этого подслоя, оцененная по видимому изме-

нению цветового оттенка бронзы и наличию видимых дисперсных выделений фазы NiBe, составляет ~25 мкм. Следующий подслои толщиной до 10 мкм состоит из смеси фаз α -Cu(Be) + γ -BeCu, а далее располагается подслои светлой фазы γ -BeCu желтоватого оттенка толщиной около 5 мкм.

В дальнейшем в целях уточнения структуры этого переходного диффузионного слоя было проведено дополнительное изучение его материалов после травления (поверхность бериллиевого шлифа травилась кипячением в 10-процентном водном растворе щавелевой кислоты в течение 30 с, поверхность бронзового – протиркой 10-процентным водным раствором хлорного железа). Травление выявило ряд особенностей микроструктуры. На кромке бериллиевого шлифа проявилась структура переходного слоя, состоящая как минимум из двух подслоев (рисунок 10). А на кромке бронзового шлифа четко выявилась структура трех подслоев общей толщиной около 50 мкм (рисунок 11).



Рисунок 10. Микроструктура бериллия в третьем макете ПС вблизи поверхности разрушения (после травления)

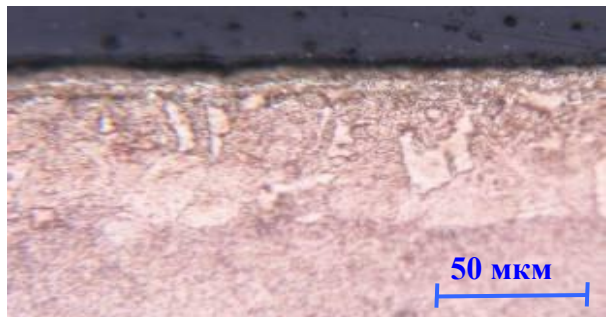


Рисунок 11. Микроструктура бронзы в третьем макете ПС вблизи поверхности разрушения (после травления)

Таким образом, после выполненного уточнения можно утверждать, что в материале переходного диффузионного слоя между бериллием и бронзой в третьем макете ПС имеет место следующая последовательность структурных подслоев:

$\text{Be}_2\text{Cu} \rightarrow \gamma\text{-BeCu} \rightarrow (\gamma\text{-BeCu} + \alpha\text{-Cu(Be)}) \rightarrow \alpha\text{-Cu(Be)}$.

Как показало изучение микроструктуры переходного слоя, разрушение третьего макета ПС протекало по одной из границ подслоя фазы γ -BeCu с соседними подслоями, т.е. на одних участках оно проходило по границе подслоя фазы γ -BeCu с подслоем фазы Be_2Cu , а на других – по границе этого подслоя с подслоем смеси фаз (γ -BeCu + α -Cu(Be)). Различия в цвете участков поверхностей разрушения третьего макета ПС (рисунок 2) определяется как раз тем, на

каком из них оказался подслои фазы γ -BeCu после разрушения макета: на "бериллиевой" поверхности он создавал участки потемнения, а на "бронзовой" – участки осветления.

В заключение следует отметить, что третий макет ПС во многом отличался от первых двух. В третьем макете разрушение переходного слоя между бериллием и бронзой произошло не по подслою фазы Be_2Cu , как в первых двух макетах, а по одной из границ подслоя фазы γ -BeCu с соседними подслоями. Кроме того, наблюдаемая металлографически суммарная максимальная толщина этого переходного диффузионного слоя в третьем макете (около 50 мкм) оказалась в несколько раз меньшей, чем в предыдущих макетах (150 мкм в первом макете и 160 во втором). Наконец, материал бронзового слоя третьего макета ПС также имел отличие от материала предыдущих двух макетов. Основным отличием являлось слабое присутствие в бронзе второй фазы NiBe. Это проявилось в существенно меньшем количестве видимых мелкодисперсных выделений, в отсутствии выделений второй фазы размером крупнее 2 мкм, а также в существенно меньших значениях микротвердости (0,87 ГПа против 1,1 ГПа в предыдущих двух макетах); такая ситуация позволяет сделать заключение об отсутствии старения в бронзовом слое этого макета.

И только в макроструктуре бронзы третьего макета ПС (рисунок 12) ничего необычного не обнаруживалось: строение бронзы крупнозернистое, с сильной вытянутостью зерен в периферийной области макета и заметной кристаллографической текстурой материала (подобная картина макростроения наблюдалась при исследовании бронзы первого макета ПС).



Рисунок 12. Макроструктура бронзы в третьем макете ПС (периферия макета слева)

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализируя полученные результаты изучения ползэкспериментального состояния макетов ПС, необходимо обратить внимание на два следующие обстоятельства. Во-первых, процесс изготовления макетов по технологии горячей штамповки создавал в них деформированные, напряженные и другие неравновесные состояния, а в ходе термических испытаний макетов эти состояния частично восстанавливались (частично приводились к равновесному) за счет разнообразных термически активируемых процессов (возврат, полигонизация, рекристаллизация, релаксация напряжений, выделение вторых фаз, распад пересыщенных растворов и др.). Это восстановление можно увидеть, в частности, по увеличению толщины переходного диффузионного слоя h между слоями бериллия и бронзы и повышению дисперсионного твер-

дения бронзы (повышению микротвердости ΔH_V) с увеличением длительности термического (и термомеханического) воздействия на макеты.

Действительно (таблица 3), при испытаниях третьего макета ПС длительность термического воздействия была минимальной (один цикл испытаний), поэтому толщина h составила только 50 мкм, а прирост микротвердости ΔH_V практически отсутствовал; у первого и второго макетов ПС при заметно большей длительности испытаний значения h выросли втрое, а значения ΔH_V – в двадцать-тридцать раз.

Во-вторых, первые из выбранных для опробования методик и приемов изготовления макетов ПС содержали слишком много нового: одновременное прессование трехслойной заготовки, прессование сначала двухслойной заготовки, а затем ее совместное прессование с третьим слоем, соединение первых двух слоев без прессования, прессование изделия в контейнере или без контейнера; варьировались температуры, давления и длительности прессования; в двух из трех макетов были созданы дополнительные замковые соединения между слоями, в которых стальной слой охватывал бронзовый, а бронзовый слой или охватывал бериллиевый или охватывался бериллиевым.

Таблица 3. Влияние длительности термических испытаний макетов на толщину переходного слоя между слоями бериллия и бронзы и повышение микротвердости бронзы

Номер макета ПС	Число циклов испытаний	Максимальная толщина переходного диффузионного слоя h , мкм	Повышение микротвердости бронзы ΔH_V , ГПа
Первый макет	8	~150	0,27
Второй макет	40	~160	0,23
Третий макет	1	~50	0,01

Кроме того, вместо предполагаемых к использованию для изготовления первой стенки ИТЭР материалов США (бериллий S-65C, хром-циркониевая бронза CuCrZr и нержавеющая сталь 316L) для изготовления макетов ПС были использованы отечественные бериллий ТГП-56, никель-бериллиевая бронза С17510 и сталь 12Х18Н10Т. Наконец, все это многообразие технологической новизны было опробовано на всего лишь трех макетах ПС, что недопустимо мало для исследования столь многофакторного влияния на состояние изделия процессов его изготовления.

Что же касается конечного результата исследований, то, подводя итог выполненным материаловедческим исследованиям послеэкспериментального состояния макетов первой стенки реактора ИТЭР, следует заключить, что первые из предложенных и опробованных в АО "УМЗ" простых и недорогих методик и приемов технологии горячей штамповки изделий оказались не способными обеспечить создание адге-

зионно прочных соединений слоев бериллия с бронзой. Очевидно, что повышение качества трехслойных изделий, изготавливаемых по технологии горячей штамповки, может быть достигнуто только путем значительного совершенствования этих методик и приемов, сопровождаемого необходимыми и достаточными циклами их технологической отработки, включающими прочностные и физико-механические испытания, а также материаловедческие исследования еще на уровне их изучения в ЦЗЛ. В частности, качество макетов ПС, изготовленных с помощью усовершенствованных методик и приемов должно быть таким, чтобы на термические испытания поступали макеты, находящиеся в равновесном состоянии или хотя бы в состоянии, близком к таковому.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В целях разработки относительно простых технологий изготовления элементов и модулей первой стенки реактора ИТЭР в Усть-Каменогорском АО "УМЗ" были проведены работы по выбору и опробованию простых и недорогих методик и приемов технологии изготовления макетов ПС путем горячей штамповки. По результатам выполненных в Институте атомной энергии НЯЦ РК термических испытаний этих макетов были установлены неодинаковые, но в целом низкие показатели адгезионной прочности и ресурсной стойкости всех трех макетов (разрушившихся по границе бериллиевых слоев с бронзовыми). Для исследования влияния технологии изготовления макетов ПС на адгезионную прочность соединений в этих составных изделиях были проведены послеэкспериментальные материаловедческие исследования состояния макетов, по результатам которых были сделаны следующие выводы:

1. Установлено, что разрушения первого и второго макетов ПС в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой происходили по местам залегания подслоя фазы Be_2Cu , а разрушение этого же соединения в третьем макете – по одной из границ подслоя фазы $\gamma-BeCu$ с подслоем Be_2Cu или подслоем смеси фаз $\gamma-BeCu$ и $\alpha-Cu(Be)$.

2. Показано, что причины разрушения макетов ПС связаны с возникновением в переходном диффузионном слое между бериллием и бронзой интерметаллидных фаз, охрупчивающих материал этого переходного слоя, что при термических испытаниях создавало условия для возникновения трещин под влиянием термических напряжений, обусловленных различием в коэффициентах линейного расширения у матричных и интерметаллидных фаз.

3. Выявлено, что использованный при изготовлении второго макета ПС технологический прием диффузионной сварки без прессования, т.е. только путем контакта стального слоя с расплавом бронзы, представляется несостоятельным.

4. Обращено внимание на то, что все макеты, изготовленные с помощью первых из опробованных в АО "УМЗ" простых и недорогих методик и приемов технологии горячей штамповки, оказались в неравновесном состоянии, что в процессе их термических

испытаний вызывало увеличение толщины переходного диффузионного слоя между бериллием и бронзой за счет роста интерметаллидных фаз, охрупчивающих материал этого слоя.

ЛИТЕРАТУРА

1. Чернов, В. М. Современные конструкционные материалы для термоядерного реактора / В. М. Чернов, М. В. Леонтьева-Чернова, М. М. Потапенко // Экспериментальные возможности токамака КТМ и программа исследований : тезисы Междунар. семин., Астана, 10-12 окт. 2005. – Курчатов : НЯЦ РК, 2005. – С. 36–37.
2. Пат. 5901336 США. Bonding beryllium to copper alloys using powder metallurgy compositional gradients ; опубл. 04.05.99.
3. Пат. 6077365 США. Beryllium-copper bonding material ; опубл. 20.06.00.
4. Вайерман, Ф. Е. Паяные соединения металлов применительно к диверторным конструкциям / Ф. Е. Вайерман, И. В. Чумаков, А. А. Гармаш // Инженерные проблемы термоядерных реакторов : тезисы VI Рос. конф., Санкт-Петербург, 1997. – С.-Пб. : НИИЭФА, 1997. С. 28–29.
5. Бериллий. Наука и технология / Пер. с англ. под ред. Г. Ф. Тихинского, И. И. Папинова. – М. : Metallurgiya, 1984. – 218 с.
6. Разработка технологии сварки медь-бериллий и получение сварных медно-бериллиевых образцов : технич. отчет / АО "УМЗ" ; рук. В. В. Савчук. – Усть-Каменогорск, 1997. – 47 с.
7. Ударцев, С. В. Экспериментальное исследование поведения первой стенки реактора ИТЭР в штатных и аварийных режимах ее нагрева / С. В. Ударцев, Д. Ш. Кулжанов, И. И. Дерявко // Вестник НЯЦ РК. – 2008. – вып. 4. – С. 50–56.
8. Экспериментальное исследование поведения плоских трехслойных композиций типа бериллий-бронза-сталь в условиях тепловых режимов, соответствующих эксплуатационным режимам первой стенки реактора ИТЭР / В. В. Бакланов [и др.] // Ядерная энергетика Республики Казахстан. ЯЭ-2008 : докл. Междунар. конф., Курчатов, 11-13 июня 2008. – Курчатов : ИАЭ НЯЦ РК, 2008. – С. 145–149.
9. Исследование поведения макетов первой стенки ИТЭР в штатных и аварийных режимах нагрева / С. В. Ударцев [и др.] // Ядерная и радиационная физика : тезисы Междунар. конф., Алматы, 8-11 сент. 2009. – Алматы : ИЯФ НЯЦ РК, 2009. – С. 109.
10. Исследование состояния макетов первой стенки ИТЭР после термических испытаний / В. В. Бакланов [и др.] // Там же. – С. 111–112.

«ӨМЗ» АҚ ЖАСАЛҒАН ИТЭР РЕАКТОРЫНЫҢ БІРІНШІ ҚАБЫРҒА МАКЕТТЕРІНІҢ САПАСЫН ЗЕРТТЕУ

Бакланов В.В., Дерявко И.И., Коянбаев Е.Т., Кукушкин И.М., Саблук В.В., Ударцев С.В.

Қазақстан, Курчатов, ҚР ҰЯО Атом энергиясы институты

«ӨМЗ» Өскемен АҚ жасалған ИТЭР бірінші қабырға макеттерінің сынама тобының термиялық сынақтарын жүргізу кезінде ыстық штамптаудың жәй және қымбат емес әдістерін пайдаланумен бұл үш қабатты (бериллий-кола-болат) өнімдерде адгезиондық беріктіктің төмен көрсеткіштері табылды. Эксперименталдықтан кейінгі материалтану зерттеулерімен макеттер жағдайы бұл құрамдық өнімдерде қосудың адгезиондық тығыздыққа макеттерді жасау технологиясының әсері анықталды және бериллий мен қола арасында шек бойынша олардың бұзылу себептері анықталды.

QUALITY RESEARCH OF ITER BLANKET MOCK-UPS PRODUCED IN SC "UMP"

V.V. Baklanov, I.I. Deriavko, E.T. Koyanbaev, I.M. Kukushkin, V.V. Sabluk, S.V. Udartsev

Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

During the thermal tests conduction of the blanket mock-ups of ITER reactor produced in Ust-Kamenogorsk Stock Corporation "UMP" using simple and inexpensive methods of hot stamping the low factors of adhesional strength of the three-layered (beryllium-bronze-steel) products are educed. With the help of the post-experimental material testing researches mock-ups condition the mock-up production technology influence on the adhesional strength of connections in these complex products is cleared and the reasons of their destruction along the border between the beryllium and bronze is identified.

УДК 621.039.546

ИДЕНТИФИКАЦИЯ ЦИРКОНИЙ-УРАНОВЫХ ТВЭЛОВ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОГО РЕАКТОРА ИВГ.1М

¹⁾Бакланов В.В., ¹⁾Гныря В.С., ²⁾Горин Н.В., ¹⁾Дерявко И.И., ¹⁾Кенжин Е.А.,
¹⁾Колбаенков А.Н., ³⁾Павшук В.А., ⁴⁾Тухватулин Ш.Т., ⁵⁾Черепнин Ю.С., ¹⁾Чернядьев В.В.

¹⁾Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

²⁾РФЯЦ-ВНИИТФ, Снежинск, Россия

³⁾РНЦ КИ, Москва, Россия

⁴⁾ФГУП НИИ НПО «Луч», Подольск, Россия

⁵⁾ФГУП НИКИЭТ, Москва, Россия

В рамках проблемы противодействия незаконному обороту ядерных материалов продолжено рассмотрение вопросов идентификации топливных материалов исследовательских реакторов. Рассмотрены особенности идентификации стержневых оболочковых цирконий-урановых ТВЭлов исследовательского реактора ИВГ.1М. Показано, что для идентификации целого ТВЭла этого реактора достаточно провести его визуальный осмотр, измерение геометрических размеров, массы и электросопротивления и определение степени обогащения урана. Приведены некоторые дополнительные данные по рассматриваемым ТВЭлам (состав, структура и др.), позволяющие идентифицировать также и фрагменты этих ТВЭлов.

ВВЕДЕНИЕ

В последние годы на территории государств, образовавшихся после распада СССР, а также на территории ЕС правоохранительные органы столкнулись с участвовавшими случаями вовлечения ядерных материалов в незаконный оборот. Для обеспечения необходимых доказательств со стороны обвинения при задержании нарушителя необходима идентификация неизвестного топлива для определения мест его производства, хищения и возможного предназначения. Проблема противодействия незаконному обороту ядерных материалов и, в частности, проблема идентификации неизвестного топлива несомненно актуальна, в связи с чем в научной среде даже появился термин «Nuclear Forensics» (ядерная криминалистика, или доказательная ядерная физика). Проблеме идентификации ядерного топлива уделяется повышенное внимание, поскольку топливо активных зон исследовательских реакторов представляет существенный интерес для лиц, преследующих противоправные цели, так как оно, как правило, содержит высокообогащенный уран.

Ранее в работах [1, 2] были проанализированы возможности идентификации топлива импульсных исследовательских реакторов (в частности, топливных блоков импульсного реактора ИГР), а в работе [3] были рассмотрены особенности идентификации карбидных, карбидографитовых и карбонитридных ТВЭлов реакторов ЯРД, прошедших в 1975-1997 годах испытания в специальных исследовательских реакторах ИВГ.1, ИРГИТ и РА.

Из результатов этих работ следовало, что при идентификации целых топливных деталей в большинстве случаев можно ограничиться их визуальным осмотром и измерением геометрических размеров. Однако если топливная деталь разрушена и превращена в скрап, то для идентификации такого «неизвестного» топлива становится необходимым до-

полнительное определение его химического состава и степени обогащения, а также некоторых свойств.

В частности, в отношении стержневых керамических ТВЭлов реакторов ЯРД, испытанных в гелиевых, водородных и азотных теплоносителях, было показано, что для их идентификации должна использоваться следующая последовательность этапов ее выполнения: визуальный осмотр ТВЭлов (с фиксацией их цвета), измерение мощности экспозиционной дозы, измерение геометрических размеров, определение обогащения, измерение физических характеристик, определение структурных характеристик, установление элементного состава. При этом было отмечено, что для однозначной идентификации этих ТВЭлов не обязательно выполнение всей указанной последовательности идентификационных этапов; идентификация может быть достигнута уже после выполнения нескольких первых этапов.

В настоящей работе продолжено рассмотрение вопросов идентификации топливных деталей исследовательских реакторов на примере оболочковых цирконий-урановых ТВЭлов исследовательского реактора ИВГ.1М, представляющего собой модернизированный вариант существовавшего ранее реактора ИВГ.1.

ФОРМА И РАЗМЕРЫ ТВЭЛОВ РЕАКТОРА ИВГ.1М

Исследовательский высокотемпературный газоохлаждаемый реактор ИВГ.1, предназначенный для испытаний ТВЭлов, ТВС и активных зон реакторов ЯРД [3-6], эксплуатировался с 1975 года по 1988 год. В этом реакторе (гетерогенном канальном корпусном тепловом реакторе с газовым охлаждением ТВС, водяным замедлителем и бериллиевым отражателем нейтронов) были выполнены все основные и наиболее сложные испытания ТВЭлов по тематике ЯРД. В 1989 году была начата модернизация реактора ИВГ.1, и в 1990 году он был реконструирован (модернизирован) в исследовательский водоохла-

даемый гетерогенный реактор ИВГ.1М [7, 8], предназначенный для материаловедческих исследований по проблемам безопасности ядерных и термоядерных энергетических реакторов.

При этом активная зона модернизированного реактора ИВГ.1М (исследовательского гетерогенного корпусного реактора канального типа на тепловых нейтронах с легководным замедлителем и теплоносителем и бериллиевым отражателем) была укомплектована 30 разработанными и изготовленными в ФГУП НИИ НПО «Луч» проточными водоохлаждаемыми технологическими каналами типа ВОТК, а в центре активной зоны был организован петлевой экспериментальный канал диаметром 80 мм для обеспечения возможности проведения материаловедческих исследований.

Каналы ВОТК двух модификаций, различающихся только конструкцией ТВС, располагаются в этом реакторе тремя кольцевыми рядами таким об-

разом, что в третьем (периферийном) ряду находятся 18 каналов с ТВС, содержащими по одной нагревной секции, укомплектованной твэлами длиной 600 мм, а в первом и втором рядах – 12 каналов с ТВС, содержащими по две секции, одна из которых укомплектована твэлами длиной 600 мм, а другая – твэлами длиной 200 мм. Твэлы длиной 200 мм ничем (кроме длины) не отличаются от твэлов длиной 600 мм, те и другие представляют один и тот же тип оболочкового спирально-стержневого двухлопастного твэла с диаметром описанной окружности 2,8 мм и толщиной лопасти 1,5 мм. Внешний вид твэла 600-миллиметровой длины показан на рисунке 1. Материалом оболочки твэлов реактора ИВГ.1М является цирконий-ниобиевый сплав Э110, а материалом сердечника – цирконий-урановый сплав с содержанием урана в пределах от ~3 до ~4 % (мас.); торцы твэлов защищены никелевым покрытием.



Рисунок 1. Внешний вид твэла исследовательского реактора ИВГ.1М

ВОЗМОЖНОСТЬ ИДЕНТИФИКАЦИИ ТВЭЛОВ

Как известно [9-11], среди большого количества исследовательских реакторах существуют реакторы, использующие одинаковые или близкие по форме и размерам однотипные твэлы, что сильно затрудняет идентификацию реактора, которому принадлежит конкретный твэл. С этой точки зрения твэлы реактора ИВГ.1М индивидуальны и предназначены только для этого реактора. Ни один из исследовательских реакторов не имеет таких твэлов, и квалифицированному эксперту не составит труда только по одному внешнему виду твэла указать на его предполагаемую принадлежность реактору ИВГ.1М.

Действительно, идентифицируемый твэл реактора ИВГ.1М со светлой блестящей металлической поверхностью имеет, как показано на рисунке 2, форму длинной пластины (длина которой много больше ее ширины и толщины), закрученную с шагом S (равным 30 мм) вдоль оси в левовинтовом направлении; такой твэл обычно обозначают как «витой двухлопастной» или «спирально-стержневой двухлопастной», а его параметры D и h – как «диаметр описанной окружности» и «толщина лопасти» соответственно.

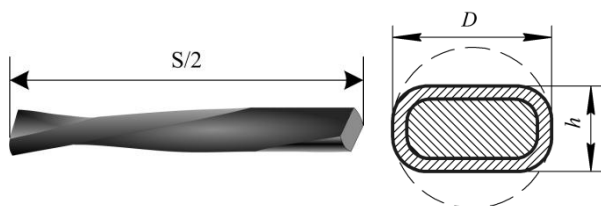


Рисунок 2. Основные геометрические параметры твэла: $S > D$, $S > h$

Если в дополнение к визуальному обследованию выполнить измерения длины, диаметра окружности D , толщины лопасти h и шага закрутки S , массы твэла (среднее значение массы у 600-миллиметрового твэла составляет ~15,4 г, у 200-миллиметрового – вдвое меньше), а также его электросопротивления (погонное электросопротивление твэла составляет около 0,15 Ом/м) и определить степень обогащения его топлива (обогащение урана по изотопу U-235 в твэлах реактора ИВГ.1М составляет 90 %), то идентификация целого твэла будет полностью закончена. Выполнение полной процедуры идентификации гарантирует установление принадлежности идентифицируемого целого твэла реактору ИВГ.1М.

Задача идентификации фрагментов твэлов заметно усложняется, поскольку будут отсутствовать данные по таким характерным параметрам твэла, как его длина и масса, а в случае очень коротких (менее 5 мм) фрагментов – и погонное электросопротивление. В такой ситуации становится необходимым выполнение дополнительных исследований конструкции, состава, структуры и свойств идентифицируемых фрагментов и сравнение полученных результатов с известными данными по конструкции, составу, структуре и свойствах твэлов реактора ИВГ.1М, которые можно найти в технологии изготовления этих твэлов и в результатах их послереакторных исследований.

ТЕХНОЛОГИЯ ИЗГОТОВЛЕНИЯ ТВЭЛОВ

Основу технологической схемы изготовления твэлов исследовательского реактора ИВГ.1М составляют совместное прессование сердечника с оболочкой и волочение полученного биметаллического прутка. Основными операциями изготовления твэлов являются

ся: получение цирконий-уранового сплава, выплавление цилиндрических топливных слитков, прессование слитков, изготовление биметаллических пресс-заготовок, прессование биметаллических прутков, волочение проволоки, сплющивание проволоки, скручивание сплющенной проволоки, резка твэлов в размер, рихтовка, герметизация торцов.

Получение цирконий-уранового сплава осуществляется в электродуговой печи в атмосфере инертного газа нерасходуемым вольфрамовым электродом: после расплавления на медной водоохлаждаемой подложке навески из кусочков урана и циркония (в требуемом весовом соотношении) получается небольшая топливная «лепешка». Выплавление топливных слитков диаметром около 50 мм и высотой 60-80 мм проводится переплавлением кусочков измельченных «лепешек» в медном водоохлаждаемом тигле электродуговой печи в среде инертного газа. Прессование (выдавливание) топливных слитков проводится на гидравлическом прессе при температуре 800 °С с коэффициентом вытяжки μ около 7 (семикратное уменьшение площади сечения слитка).

Изготовление биметаллической пресс-заготовки выполняется путем сборки выдавленного топливного слитка, стакана из сплава Э110, технологической пробки из того же сплава и медной шайбы с последующей герметизацией слитка в стакане привариванием пробки к стакану. Прессование (выдавливание) биметаллических прутков проводится при температуре 700 °С с коэффициентом вытяжки $\mu = 19$. Такая вытяжка обеспечивает качественное металлургическое сцепление сердечника с оболочкой и в то же время не приводит к разрушению пуансона. Отпрессованные прутки диаметром ~8 мм отжигаются при 800 °С в течение 1 ч в вакууме $1 \cdot 10^{-3}$ торр.

Многопроходное волочение отпрессованных прутков до диаметра 2,3 мм осуществляется через твердосплавные фильеры на цепном волочильном станке и волочильном барабане с тремя промежуточными и одним заключительным отжигами при 800 °С. Сплющивание проволоки диаметром 2,3 мм выполняется на прокатном стане в два приема с одним промежуточным отжигом: сначала сплющивание до толщины 1,8 мм, затем одночасовой отжиг при 800 °С, а затем сплющивание до окончательной толщины 1,5 мм. (Сплющивание проволоки без промежуточного отжига приводит к разрушению топливного сердечника.) Скручивание сплющенной проволоки с заданным шагом проводится с помощью вращающейся фильеры, а в качестве тянущего устройства используется волочильный барабан.

Резка твэлов в размер проводится на отрезном станке с использованием специального кондуктора. Рихтовка твэлов осуществляется путем двукратного проталкивания каждого твэла через вращающуюся со скоростью 1000 об/мин слегка изогнутую трубку длиной 200 мм. Герметизация торцов твэлов для предотвращения выхода продуктов деления из топ-

ливного сердечника в теплоноситель производится методом электролитического осаждения никеля: после химической подготовки торцов твэлов осаждение выполняется последовательно в двух никельсодержащих растворах (в первом растворе создается слой толщиной около 5 мкм, обладающий хорошей адгезией, а во втором наращивается плотный слой толщиной не менее 50 мкм).

В заключение осуществляется проверка качества изготовленных твэлов путем исследования заданного числа изделия в каждой партии. При этом контролируется толщина никелевого защитного покрытия и его герметичность, геометрические размеры твэла (диаметр, длина, кривизна, толщина лопасти, шаг закрутки), равномерность распределения U-235 по длине изделия, химический состав твэла. В частности, толщина покрытия торцов твэлов контролируется металлографическим методом на продольном разрезе торца твэла, а герметичность покрытия – химическим способом по разности скоростей взаимодействия циркония и никеля с плавиковой кислотой (у никеля она на два-три порядка меньше, чем у циркония); равномерность распределения U-235 в твэле контролируется как радиометрическим, так и химическим методами, а химический состав твэла – стандартными методами аналитической химии.

Результаты этих контрольных исследований содержат те исходные данные по конструкции, составу и структуре твэлов реактора ИВГ.1М, которые необходимы при идентификацию фрагментов твэлов. Так, например, из усредненных данных по составу твэлов (таблица 1) можно видеть, что характерной особенностью химического состава твэлов реактора ИВГ.1М является (кроме обязательного наличия циркония, урана и ниобия) повышенное содержание примесей железа и меди.

Таблица 1. Химический состав твэлов реактора ИВГ.1М

Элемент	Содержание, % (мас.)
Кобальт	$<0,4 \cdot 10^{-3}$
Бериллий	$0,4 \cdot 10^{-3}$
Свинец	$0,4 \cdot 10^{-3} \dots 0,8 \cdot 10^{-3}$
Марганец	$0,5 \cdot 10^{-3} \dots 2,4 \cdot 10^{-3}$
Алюминий	$1,6 \cdot 10^{-3} \dots 3,0 \cdot 10^{-3}$
Гафний	$2,0 \cdot 10^{-3} \dots 6,9 \cdot 10^{-3}$
Титан	$2,4 \cdot 10^{-3} \dots 4,1 \cdot 10^{-3}$
Хром	$2,8 \cdot 10^{-3} \dots 3,4 \cdot 10^{-3}$
Кальций	$<4 \cdot 10^{-3}$
Никель	$3,3 \cdot 10^{-3} \dots 4,0 \cdot 10^{-3}$
Кислород	$<5 \cdot 10^{-3}$
Кремний	$6,5 \cdot 10^{-3} \dots 9,9 \cdot 10^{-3}$
Углерод	$7,0 \cdot 10^{-3}$
Железо	$1,5 \cdot 10^{-2} \dots 3,4 \cdot 10^{-2}$
Медь	$1,5 \cdot 10^{-2} \dots 9,8 \cdot 10^{-2}$
Ниобий	$4,2 \cdot 10^{-1} \dots 4,4 \cdot 10^{-1}$
Уран	1,7 ... 2,4
Цирконий	остальное

Из металлографических данных следовало, что среднее значение толщины оболочки твэла составляет ~0,25 мм; при этом на снимках фиксировалась

полная сплошность металлургического сцепления темно-серой (Zr,Nb)-оболочки со светло-серым (Zr,U)-сердечником, наблюдалась также хорошая адгезия защитного Ni-покрытия к торцу твэла (хорошая сплошность диффузионного сцепления белого Ni-покрытия с темно-серой (Zr,Nb)-оболочкой и со светло-серым (Zr,U)-сердечником). Из металлографических данных следовало также, что средний размер зерен как материала оболочки, так и материала сердечника составляет 15-20 мкм, а средняя толщина защитного покрытия торцев твэлов находится в диапазоне от 50 до 100 мкм.

ОБЛУЧЕННОЕ СОСТОЯНИЕ ТВЭЛОВ

Данные по конструкции, структуре и свойствам твэлов реактора ИВГ.1М, которые необходимы при идентификации их фрагментов, имеются также в результатах [12-14] послереакторных исследований твэлов одного из каналов ВОРК третьего кольцевого ряда, разделанного в 2004 году при проведении очередной проверки технического состояния реактора. В послереакторных исследованиях определялась степень деградации коррозионного и радиационного состояния твэлов после эксплуатации в реакторе в течение 14,3 лет (в исследованиях были использованы шесть облученных и шесть исходных твэлов, относящихся к центральным концентрационным зонам облученной и исходной ТВС).

Вначале была зафиксирована высокая коррозионная стойкость (Zr,Nb)-оболочек твэлов в дистиллированной воде: и визуально, и на фотоснимках состояния поверхностей облученных и исходных твэлов выглядели (см. рисунок 3) совершенно одинаковыми. Результат был вполне ожидаемым, так как известно [15, 16], что изменения состояний поверхностей цирконий-ниобиевых образцов-свидетелей после 29,4 лет пребывания в межканальном вытеснителе реактора в тех же условиях были минимальными.



Рисунок 3. Внешний вид облученного (вверху) и исходного (внизу) твэлов реактора ИВГ.1М

Для дальнейших исследований от всех твэлов были отрезаны короткие торцевые фрагменты (для изучения состояния никелевых колпачков защитных покрытий) и короткие срединные образцы (для изучения микроструктуры и определения микротвердости), а оставшиеся части твэлов были разрезаны на фрагменты длиной ~60 мм (для измерения плотности и электросопротивления).

Металлографическими исследованиями было установлено, что исходная (заданная технологией изготовления) сплошность механического и диффузионного сцепления (Zr,Nb)-оболочки с топливным (Zr,U)-сердечником у облученных твэлов сохраняется полностью: на рисунках 4-6 достаточно хорошо виден бездефектный переход от темно-серого цирконий-ниобиевого материала оболочки к светло-серому цирконий-урановому материалу сердечника. На рисунке 5 видно также, что среднее значение толщины оболочки твэла действительно составляет примерно 0,25 мм. А на рисунке 6 видно, что исходная сплошность диффузионного сцепления белого Ni-покрытия с темно-серой (Zr,Nb)-оболочкой и со светло-серым (Zr,U)-сердечником у облученных твэлов также сохраняется полностью.

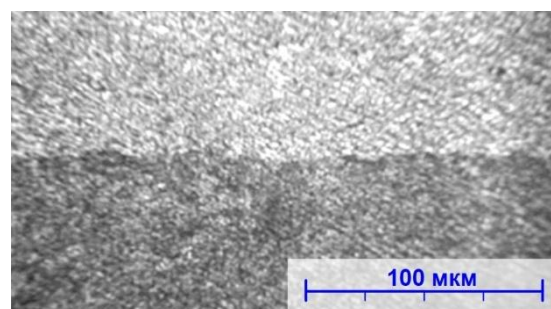


Рисунок 4. Микроструктура облученного твэла в области перехода от безурановой (Zr,Nb)-оболочки (внизу) к топливному (Zr,U)-сердечнику (вверху)

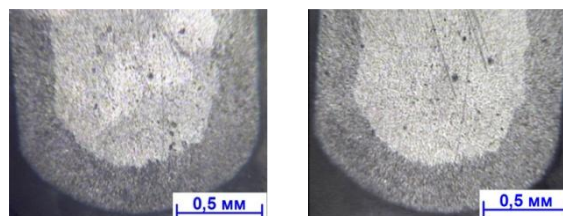


Рисунок 5. Структура поперечного сечения исходного (слева) и облученного (справа) твэлов

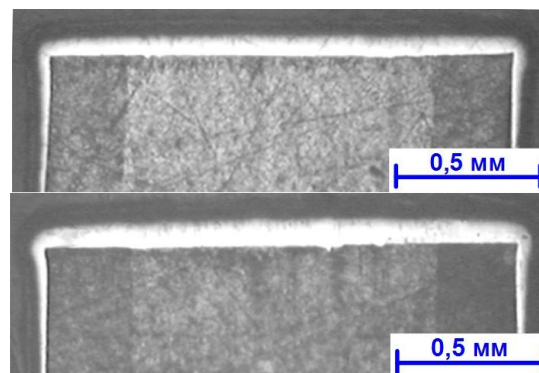


Рисунок 6. Состояние никелевого покрытия на торцах необлученного (вверху) и облученного (внизу) твэлов

Радиационные изменения характеристик твэлов оказались незначительными. При измерении плотности, микротвердости и погонного электросопротив-

тивления твэлов установлено, что облучение до флюенса тепловых нейтронов $\sim 2,3 \cdot 10^{19} \text{ см}^{-2}$ при температуре топливного сердечника $\sim 65^\circ \text{C}$ приводит к их очень слабому радиационному повреждению. Как видно из таблицы 2, плотность отторцованных фрагментов твэлов, а также микротвердость материалов оболочки и сердечника сохраняются на исходном уровне, а самая чувствительная к дефектам структуры характеристика материала – электросопротивление – увеличивается только на $\sim 1\%$.

Таблица 2. Радиационные изменения характеристик твэлов реактора ИВГ.1М

Определяемая характеристика твэла	Исходное состояние	Облученное состояние
Гидростатическая плотность твэла γ , г/см ³	6,61	6,61
Микротвердость оболочки твэла (H_V) _{обол.} , ГПа	1,6	1,6
Микротвердость сердечника твэла (H_V) _{серд.} , ГПа	1,8	1,8
Погонное электросопротивление твэла R, Ом/м	0,149	0,151

БЛИЗКИЕ ПО ФОРМЕ И ТИПУ ТВЭЛЫ

Основная характерная особенность стержневых оболочковых твэлов исследовательского реактора ИВГ.1М, позволяющая идентифицировать их по внешнему виду, связана с их закрученностью вдоль оси. В какой-то степени на них похожи стержневые твэлы разрабатываемого южно-корейского исследовательского реактора, которые проходили испыта-

ния в российском реакторе «Гидра» с целью определения порога удельного энерговыделения в условиях реактивной аварии [17]. Эти твэлы также закручены вдоль своей оси. Их внешний вид и основные характеристики представлены на рисунке 7 и в таблице 3. При этом в таблице 3 для удобства сравнения рассматриваемых типов твэлов приведены также и основные характеристики исследовательского реактора ИВГ.1М.

Следует иметь в виду, что указанные в таблице пределы концентрации урана в твэлах реактора ИВГ.1М (3-4 %) обусловлены наличием следующего профилирования загрузки урана в ТВС различных каналов ВОРК (см. также последнюю строку таблицы): в 600-миллиметровых твэлах центральной и периферийной зон профилирования в ТВС каналов третьего кольцевого ряда содержится соответственно по 0,331 и 0,288 г урана-235, а в 600-миллиметровых твэлах этих зон в ТВС каналов первого и второго рядов – по 0,288 и 0,232 г (в 200-миллиметровых твэлах этих же ТВС содержится втрое меньшее количество урана-235).



Рисунок 7. Цирконий-урановые твэлы южно-корейского водо-водяного исследовательского реактора

Таблица 3. Основные характеристики твэлов разрабатываемого южно-корейского исследовательского реактора и эксплуатирующегося казахстанского исследовательского реактора ИВГ.1М

Обозначение характеристики твэла	Значение характеристики твэла	
	разрабатываемого южно-корейского водо-водяного реактора	эксплуатирующегося казахстанского водо-водяного реактора ИВГ.1М
Материал топливного сердечника	Zr + 38 % (мас.) U	Zr + (3-4) % (мас.) U
Обогащение топлива по U-235, %	19,8	90
Материал оболочки	Zr + 1 % (мас.) Nb	Zr + 1 % (мас.) Nb
Толщина оболочки, мм	0,5	0,25
Основа технологии изготовления	совместное продавливание через фильеру	совместное волочение, сплющивание и скручивание
Форма поперечного сечения	оребранный квадрат	сплюснутый круг
Описанный диаметр, мм	7,0	2,8
Длина стороны квадрата, мм	5,1	–
Толщина лопасти, мм	–	1,5
Диаметр концевиков, мм	3,4	–
Полная длина изделия, мм	300	600 и 200
Длина топливного сердечника, мм	260	600 и 200
Шаг закрутки лопасти, мм	400	30
Направление закрутки	правовинтовое	левовинтовое
Масса изотопа U-235, г	2,42	0,331, 0,288 и 0,232 – в твэлах длиной 600 мм; 0,096 и 0,077 – в твэлах длиной 200 мм

Сопоставление внешних видов этих твэлов (рисунки 1 и 7), а также их основных характеристик (таблица 3) показывает, что различия между твэлами достаточно заметны, и поэтому любой эксперт сможет относительно просто различить эти два близких по типу твэла.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

При выполнении работ по идентификации «неизвестного» твэла исследовательского реактора эксперту в обязательном порядке необходимо вначале надежно определить возможно большее количество идентификационных признаков твэла (геометрических, конструктивных, ядерно-физических, химических, физико-

механических, структурных и др.), а затем сравнить их с имеющимися данными по идентификационным признакам известных исследовательских реакторов.

Отсюда следует, что при проведении идентификационных работ большую помощь эксперту могла бы оказать (на что было уже указано в [1-3]) специализированная база данных, содержащая систематизированную информацию о ТВЭлах всех исследовательских реакторов. Однако такой базы данных пока еще нет, а существующая в настоящее время база данных МАГАТЭ по исследовательским реакторам не предназначена для решения рассматриваемых задач идентификации ТВЭлов.

Поэтому для решения проблемы идентификации ТВЭлов исследовательских реакторов (проблемы, являющейся частью проблемой противодействия незаконному обороту ядерных материалов) в настоящее время необходимо начать создание базы данных по идентификационным признакам ТВЭлов каждого из существующих или существовавших исследовательских реакторов. В связи с этим представленную в настоящей работе информацию по стержневым оболочковым цирконий-урановым ТВЭлам исследовательского реактора ИВГ.1М следует рассматривать как один из шагов в этом направлении.

Результаты работы показали, что представленный набор идентификационных признаков витых стержневых цирконий-урановых ТВЭлов реактора ИВГ.1М гарантирует возможность установления принадлежности идентифицируемого целого ТВЭла реактору ИВГ.1М. Возможно также и установление принадлежности идентифицируемых фрагментов ТВЭлов реактору ИВГ.1М при условии выполнения тщательных исследований особенностей конструкции, состава, структуры и свойств фрагментов длиной не менее 5 мм.

Кроме того, в работе оказался представленным также и набор идентификационных признаков витых стержневых цирконий-урановых ТВЭлов разрабатываемого южно-корейского исследовательского реактора (эти ТВЭлы приведены в работе в качестве объектов сравнения с ТВЭлами реактора ИВГ.1М). Представленный набор идентификационных признаков этих ТВЭлов является достаточным для установления принадлежности идентифицируемого целого ТВЭла южно-корейскому исследовательскому реактору.

Авторы благодарят своих коллег за полезные дискуссии при обсуждении постановки и результатов работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. Идентификация топливных деталей исследовательских реакторов / Н. В. Горин [и др.] // Атомная энергия. – 2007. – Т. 102, вып. 4. – С. 233–237.
2. Горин, Н. В. Противодействие НОЯМ – создание базы данных для идентификации топлива исследовательских реакторов / Н. В. Горин, Е. Н. Липилина, Ю. И. Чуриков // Учет, контроль и физзащита ЯМ и объектов : материалы IV междунар. конф., Обнинск, 19-23 окт. 2009. – Обнинск, ГНЦ ФЭИ, 2009. – С. 62–67.
3. Особенности идентификации стержневых ТВЭлов ЯРД / И. И. Дерявко [и др.] // Вестник НЯЦ РК. – 2010. – Вып. 4. – С. 95–105.
4. Реактор ИВГ.1 для отработки элементов ЯРД и ЯЭДУ / П. А. Исаев [и др.] // Ядерная энергетика в космосе : тезисы отрасл. юбил. конф., Обнинск, 15-19 мая 1990. – Обнинск, ГНЦ-ФЭИ, 1991. – Ч. 1. – С. 451–452.
5. Уласевич, В. К. История двух ядерных реакторов / В. К. Уласевич // Вестник НЯЦ РК. – 2003. – Вып. 1. – С. 45–49.
6. Исследовательский высокотемпературный реактор (к 30-летию энергетического пуска ИВГ.1) / Н. Н. Пономарев-Степной [и др.] // Атомная энергия. – 2005. – Т. 98, вып. 3. – С. 163–170.
7. Реакторные комплексы ИГР, «Байкал-1», ВВР-К и перспективы развития на их базе фундаментальных и прикладных исследований. / Э. С. Айтхожин [и др.] // Препринт НЯЦ РК. – 2000. – №00-12. – 75 с.
8. Опыт эксплуатации и перспективы модернизации комплекса исследовательских реакторов «Байкал-1» / Ю. С. Васильев [и др.] // Ядерная энергетика в Республике Казахстан. ЯЭ-2008 : доклады междунар. конф., Курчатов, 11-13 июня 2008. – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 2009. – С. 24–34.
9. Цыканов, В. А. Тепловыделяющие элементы для исследовательских реакторов / В. А. Цыканов. – Димитровград : ГНЦ РФ НИИАР, 2001. – 214 с.
10. Бать, Г. А. Исследовательские ядерные реакторы / Г. А. Бать, А. С. Коченов, Л. П. Кабанов. – М. : Энергоиздат, 1985. – 264 с.
11. Гончаров, В. В. Исследовательские реакторы. Создание и развитие / В. В. Гончаров. – М. : Наука, 1986. – 318 с.
12. Состояние деталей канала ВОТК №4 после 14-летней эксплуатации в реакторе ИВГ.1М / В. В. Бакланов [и др.] // Вестник НЯЦ РК. – 2005. – Вып. 1. – С. 24–28.
13. Состояние деталей активной зоны реактора ИВГ.1М после 30-летней эксплуатации / В. Н. Белоус [и др.] // Ядерная и радиационная физика : материалы V междунар. конф., Алматы, 26 - 29 сент. 2005. – Алматы, ИЯФ НЯЦ РК, 2006. – Ч. 2. – С. 501–508.
14. Контроль состояния деталей активной зоны реактора ИВГ.1М / В. Н. Белоус [и др.] // Исследовательские реакторы в 21 веке : доклады междунар. конф., Москва, 20-23 июня 2006. – М., НИКИЭТ, 2006. – докл. №98.
15. Исследование состояния деталей активной зоны реактора ИВГ.1М / Бакланов В. В. [и др.] // Ядерная энергетика в Республике Казахстан : тезисы междунар. конф., Курчатов, 30 мая - 3 июня 2005. – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 2005. – С. 63.
16. Анализ результатов освидетельствования состояния деталей активной зоны реактора ИВГ.1М / В. В. Бакланов [и др.] // Вестник НЯЦ РК. – 2006. – Вып. 4. – С. 89–93.
17. Импульсный растворный реактор «Гидра» и результаты реакторных испытаний ТВЭлов / Д. В. Андреев [и др.] // Ядерная энергетика в Республике Казахстан. ЯЭ-2008 : тезисы междунар. конф., Курчатов, 11-13 июня 2008. – Курчатов, ИАЭ НЯЦ РК, 2008. – С. 52.

ИВГ.1М ЗЕРТТЕУ РЕАКТОРЫ ЦИРКОНИЙ-УРАН ТВЭЛДЕРІНІҢ БІРЛЕНДІРУІ

¹Бакланов В.В., ¹Гныря В.С., ²Горин Н.В., ¹Дерявко И.И., ¹Кенжин Е.А.,
¹Колбаенков А.Н., ³Павшук В.А., ⁴Тухватулин Ш.Т., ⁵Черепнин Ю.С., ¹Чернядьев В.В.

¹Қазақстан, Қурчатов, ҚР ҰЯО Атом энергиясы институты

²Ресей, Снежинск, РФЯЦ-ВНИИТФ,

³Ресей, Мәскеу, КИ РМО

⁴Ресей, Подольск, ФГУП НИИ НПО «Луч»

⁵Ресей, Мәскеу, ФГУП НИКИЭТ

Ядролық материалдардың заңсыз айналымға қарсы әрекет мәселесінің шеңберінде зерттеу реакторларының отын материалдарын бірлендіру мәселерін қарастыру жалғастырылды. ИВГ.1М зерттеу реакторларының стерженьдік қабықшалық цирконий-уран ТВЭЛдерін бірлендіру ерекшеліктері қарастырылды. Бұл реактордың толық ТВЭЛін бірлендіру үшін оны көзбен шолу тексеру, геометриялық өлшемдер, массалар және электр кедергісін өлшеу және уран байыту дәрежесін анықтау жүргізу көрсетілді. Бұл ТВЭЛдердің фрагменттерін бірлендіруді рұқсат ететін (құрамы, құрылымы және т.б.) қарастырылған ТВЭЛдер жөніндегі кейбір қосымша деректер келтірілді.

IDENTIFICATION OF ZIRCONIUM-URANIUM FUEL ELEMENTS OF IVG.1M RESEARCH REACTOR

¹V.V. Baklanov, ¹V.S. Gnyrya, ²N.V. Gorin, ¹I.I. Deryavko, ¹E.A. Kenzhin,
¹A.N. Kolbaenkov, ³V.A. Pavshuk, ⁴Sh.T. Tukhvatulin, ⁵Yu.S. Cherepnin, ¹V.V. Chernyadev

¹Institute of Atomic Energy NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

²RFNC-ARITF, Snezhinsk, Russia

³RSC KI, Moscow, Russia

⁴FSUE RI RDC «Luch», Podolsk, Russia

⁵FSUE PERDI, Moscow, Russia

As part of the problem of opposition to illicit trafficking of nuclear materials further consideration of the of research reactors' fuel materials identification is continued. The features of the identification of rod shell zirconium-uranium fuel elements of IVG.1M research reactors are considered. It is shown that for the identification of a fuel element of the reactor it is sufficient to carry its visual inspection, measurement of geometrical dimensions, mass and electrical resistance and determination of the degree of enrichment of uranium. Some additional data on fuel elements under consideration (composition, structure, etc.), allowing to identify fragments of these fuel rods are presented.

УДК 533.9.08;621.039.66

ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ОБРАБОТКИ ДАННЫХ ФИЗИЧЕСКИХ ДИАГНОСТИК УСТАНОВКИ КТМ

Шумайлова О.Н., Колокольцов М.В., Кретинин А.А., Макаров Д.А., Садыков А.Д., Шипилов Д.В.

Институт атомной энергии НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Для обработки экспериментальных данных физических диагностик установки КТМ разработано программное обеспечение сервера обработки данных, отвечающее особенностям диагностического комплекса токамака, а также уникальности формата записи файлов регистрации данных.

ВВЕДЕНИЕ

Одним из критериев качества и эффективности, проводимых на установке исследований, является эффективность программного обеспечения обработки экспериментальных данных диагностик, как одного из наиболее востребованных и специфических видов информации. Каждая из диагностических систем нуждается в специализированной автоматизированной обработке данных, которая в первую очередь зависит от вида полученных данных и от вида, в котором эти данные необходимо представить после обработки.

Работа с экспериментальными данными КТМ будет осуществляться в два этапа: в межразрядовой паузе и в послепусковое время. Этап анализа информации в межразрядовой паузе ориентирован на экспресс оценку полученных параметров и принятие решений о дальнейших экспериментах. Второй этап проводится в послепусковое время и направлен на углубленный анализ информации. Для обоих этапов крайне важна возможность получения обработанных экспериментальных данных.

Объем получаемой за разряд информации с диагностических систем установки КТМ может достигать 8 Гб. Данные будут включать в себя зарегистрированные сигналы физических диагностик, а также рассчитанные на их основе плазмо-физические параметры. Как правило, информация, поступающая с диагностик, не несёт в себе абсолютно очевидной информации, проанализировав которую можно было бы говорить об успехе или неудаче проведённого эксперимента. Все зарегистрированные датчиками данные нуждаются в обработке, после которой имеющиеся результаты будут давать достаточно ясное представление о физических процессах, протекающих в установке.

В современном научном мире можно выделить два основных способа решения задач по обработке экспериментальных данных:

1. Централизованная обработка на специально выделенном сервере, зачастую, с использованием вычислительных кластеров повышенной мощности.
2. Самостоятельная обработка исследователями полученных экспериментальных данных.

Очевидно, что первый способ наиболее эффективен, так как позволяет, централизованно управлять

обработкой и доступом к функциональности сервера обработки экспериментальных данных, а также вариантами используемых расчетных кодов. При этом использовать какое-либо существующее решение нежелательно, так как каждый вычислительных комплекс создается в расчете на определенную установку со специфическим набором диагностических систем, используемых в определенном контексте и условиях. Поэтому, прежде всего, надо учесть состав физических диагностик, который предполагается использовать на начальном этапе работ на токамаке КТМ. В условиях первого пуска установки КТМ планируется использование следующих групп диагностических систем:

1. Диагностики энергетических потерь плазмы (ТОС-болометр, монитор энергетических потерь плазмы (AXUV));
2. Спектрометрические диагностики (монитор излучения $\text{H}\alpha$ - $\text{D}\alpha$, обзорный спектральный прибор);
3. Электромагнитные диагностики (зонды и петли);
4. Диагностики плотности плазмы (бесбойный монитор среднечордовой плотности плазмы);
5. Видеосистема (видеокамера быстродействующая, видеокамера стандартная).

Целью данной работы являлась разработка части программного обеспечения обработки данных физических диагностик и интеграция полученных от разработчиков физических диагностик кодов в сервер обработки данных.

В рамках настоящей работы было разработано программное обеспечение, позволяющее обрабатывать экспериментальные данные, полученные от представленных групп диагностических систем. Разработанные расчетные коды позволяют осуществлять математическую обработку диагностических данных, преобразование полученных данных в физические величины, определять физические и геометрические параметры плазменного шнура. На следующем шаге была выполнена интеграция расчетных модулей с сервером обработки данных.

ПРОГРАММНОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ ОБРАБОТКИ ДИАГНОСТИЧЕСКИХ ДАННЫХ

На рисунке 1 представлена принципиальная схема ИИС установки КТМ. Данные, регистрируемые

диагностической системой установки, поступают в хранилище сервера регистрации данных. Затем согласно запросу клиента необходимые файлы передаются на сервер обработки данных. Далее вызываются функции сервера обработки, вследствие чего на сервере запускается соответствующий расчетный модуль, обрабатывающий полученные данные. Обработанные результаты помещаются в базу данных, откуда передаются на сервер преобразования и представления данных.

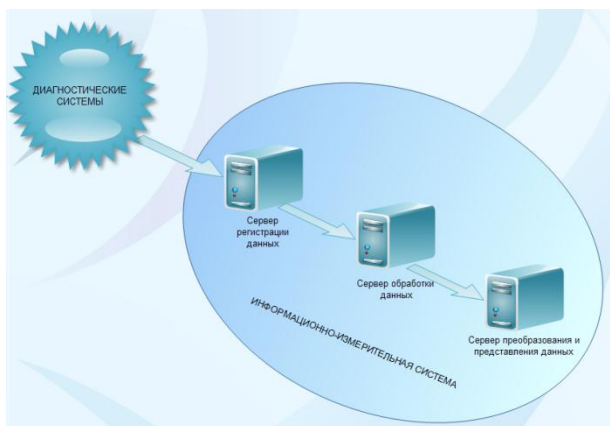


Рисунок 1. Принципиальная схема информационно-измерительной системы установки КТМ

Разнообразие диагностических систем, планируемых использовать на первом запуске токамака КТМ, подразумевает разнообразие обработки регистрируемых ими данных. Обработка включает в себя:

1. Преобразование полученных данных в физические величины
2. Математическую обработку данных (фильтрация, сглаживание, аппроксимация и т.д.)
3. Математический анализ диагностических данных и визуальное представление формы плазмы с целью определения физических и геометрических параметров плазменного шнура.

Очевидно, что практически все диагностики нуждаются в преобразовании регистрируемых данных в физические величины. Данное преобразование осуществляется путем нормировки и калибровки сигнала с каждого из каналов диагностики. Для этого сигнал с каждого из каналов умножается на свой коэффициент, в качестве которого используется либо конкретное числовое значение, либо функция.

Некоторые диагностики имеют в своем составе программное обеспечение, в котором процесс преобразования полученных данных был уже автоматизирован. В этом случае, следующим необходимым шагом является математическое преобразование, заключающееся в сглаживании, фильтрации или аппроксимации результатов. Данные функции выполняются либо с помощью написанных программных кодов либо с помощью встроенных функций используемых приложений и программных пакетов (SCILAB, PYTHON [1]).

Вместе с тем, требования к окончательному представлению результатов в большинстве случаев не позволяют ограничиваться элементарной математической обработкой. Практически все расчетные модули предполагают вычисление тех или иных физических параметров (ток плазмы, средняя плотность плазмы, интенсивность излучения и т.д.). Данные вычисления осуществляются посредством решений полиномиальных уравнений, преобразования величин путем использования функциональных зависимостей и т.д.

В качестве важного вида обработки рассматриваются математические преобразования экспериментальных данных электромагнитных диагностик. Программный код, осуществляющий данный вид обработки, позволяет представить полученные данные визуально и определить геометрические и физические параметры плазмы. Данное программное обеспечение разработано в НИИЭФА им.Ефремова. Здесь производится математический анализ полученных результатов посредством поиска минимума функционала. Важной задачей стала интеграция программы восстановления крайней магнитной поверхности в сервер обработки данных. На рисунке 2 показано визуальное представление полоидального сечения вакуумной камеры установки КТМ и рассчитанной по экспериментальным данным формы крайней магнитной поверхности плазменного разряда.

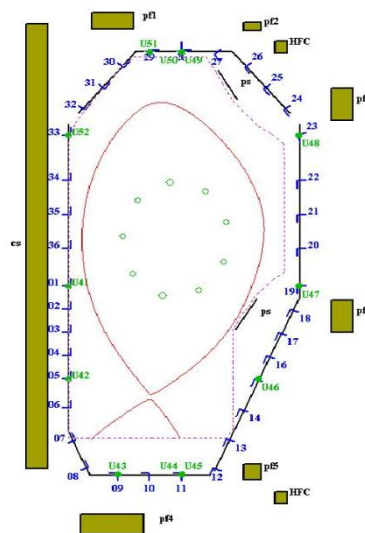


Рисунок 2. Визуальное представление крайней магнитной поверхности плазмы

На основе всего вышесказанного можно сделать вывод о том, что программное обеспечение обработки данных физических диагностик установки КТМ можно разделить на несколько групп расчетных модулей. На рисунке 3 представлена блок-схема расчетных модулей программного обеспечения обработки экспериментальных данных установки КТМ.

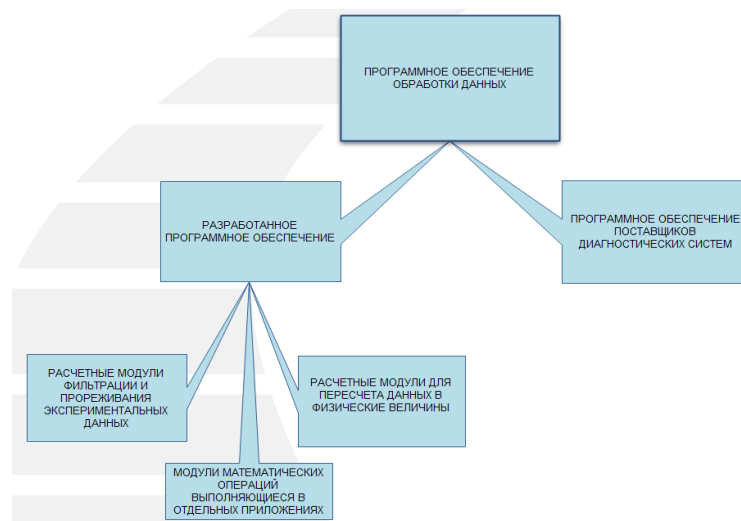


Рисунок 3. Расчетные модули ПО обработки экспериментальных данных

Однако на данный момент нельзя говорить о полной функциональной нагрузке СОД, поскольку то программное обеспечение обработки данных диагностических систем, которое на сегодняшний день разработано и интегрировано в сервер обработки, минимально для начального этапа работ на токамаке КТМ. Это говорит о том, что необходимо дальнейшее развитие структуры сервера обработки данных.

СЕРВЕР ОБРАБОТКИ ДАННЫХ

Немаловажным фактором является то, что обработка огромного количества диагностических данных должна производиться за достаточно короткий промежуток времени. Необходимо обеспечить получение первичной информации в адекватные циклу проведения эксперимента временные рамки, что в свою очередь, невыполнимо без использования современных высокопроизводительных аппаратных и программных решений. Следствием подобных требований к скорости и качеству обработки результатов является создание отдельного сервера, который бы целенаправленно работал на обработку зарегистрированных данных.

Вследствие этого, следующим шагом стала интеграция расчетных модулей с сервером обработки. В качестве средства для создания оболочки, объединяющей в себе программные коды, был использован язык разработки программного обеспечения - Java. Одно из главных преимуществ языка Java - его независимость от платформы, на которой выполняются программы. Таким образом, один и тот же код можно запускать под управлением операционных систем Windows, Linux, Solaris, Apple Mac и др. Кроме того, Java относительно легко интегрируется с математическими пакетами (MATLAB, SCILAB, Python), что важно в условиях их использования при создании расчетных элементов.

Таким образом, с помощью Java-технологий было разработано программное обеспечение, позволяющее централизованно управлять расчетными модулями, передавать им данные и получать результаты.

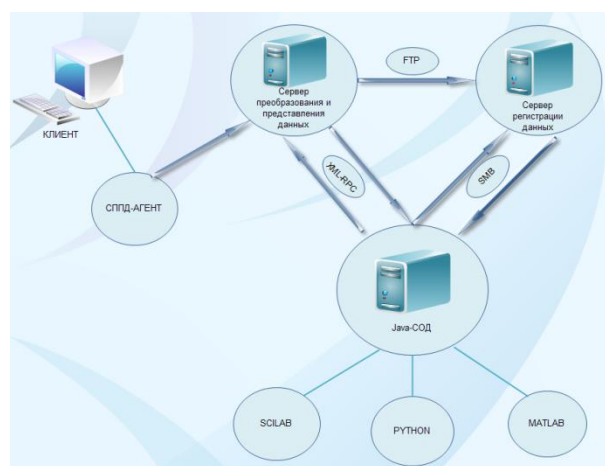


Рисунок 4. Сервер обработки экспериментальных данных установки КТМ

На рисунке 4 представлена функциональная схема, разработанного сервера обработки экспериментальных данных установки КТМ. Из данного рисунка видно, что для передачи файлов между сервером регистрации данных и сервером преобразования и представления данных используется протокол FTP. Данный протокол предназначен для передачи файлов в компьютерных сетях, он позволяет подключаться к серверам, просматривать содержимое каталогов и загружать файлы с сервера или на сервер. Команды и данные протокола FTP в отличие от большинства других протоколов передаются по разным портам. Посредством протокола FTP по запросу клиента необходимые для обработки данные поступают с сервера регистрации на сервер обработки. Далее, с помощью разработанных компонентов по протоколу XML-RPC вызываются функции СОД, вследствие чего на сервере запускается соответствующий расчетный модуль, обрабатывающий полученные данные. Было принято, что расчетный мо-

дуль принимает на вход только один входной файл, и выдает только один выходной. [2,3]

Внутренняя структура ПО СОД построена на работе классов. Основной класс программного обеспечения СОД содержит в себе список задач, определяет, сколько задач одновременно можно запускать, определяет промежутки времени, через которые нужно проверять их выполнение и, если в очереди освобождаются места, то запускаются новые задачи. Основной метод данного класса добавляет новую задачу, вызывая вспомогательный метод, который в зависимости от имени файла создает задачу соответствующего типа. После того, как задача создана, она отправляется в список задач. Имеется также класс, содержащий информацию о том, данные какого разряда необходимо обработать, какие диагностики участвуют в регистрации, где лежат файлы, и т.д. Основной метод данного класса имеет возможность обработать все данные определённого разряда.

В итоге, обработанные результаты по протоколу XML-RPC поступают в базу данных сервера представления и преобразования.

В разработке были использованы следующие инструменты и технологии:

- JAVA - развитый и стандартизированный язык программирования, применяющийся с самыми различными целями, в том числе и для создания серверных приложений. Главное его преимущество заключается в том, что он подходит абсолютно для всех компьютерных платформ, и его можно использовать без модификации, то есть он – мультиплатформенный.
- XML-RPC - удаленный вызов процедур с помощью XML. Предназначен для построения распределенных клиент-серверных приложений. Это дает возможность строить приложения, которые работают в гетерогенных сетях, например на компьютерах различных систем, производить удаленную обработку данных и управление удаленными приложениями. Поддерживает аутентификацию, что позволяет приоритетно распределять задачи между пользователями.
- FTP (File Transfer Protocol) — протокол, предназначенный для передачи файлов в компьютерных сетях. FTP позволяет подключаться к серверам, просматривать содержимое каталогов и загружать файлы с сервера или на сервер. Кроме того, возможен режим передачи

файлов между серверами. FTP поддерживает аутентификацию пользователей, что позволит избежать несанкционированного доступа к экспериментальным данным.

- SCILAB – открытый математический пакет предназначенный для выполнения технических и научных вычислений. В нем интегрированы вычисления и программирование в удобной пользовательской среде, в которой задачи и их решения выражаются в виде привычных математических обозначений, использовался на серверной части для обработки данных.
- PYTHON — высокоуровневый язык программирования с акцентом на производительность разработчика и читаемость кода. Синтаксис ядра Python минималистичен. В то же время стандартная библиотека включает большой объем полезных функций. Python, поддерживает большинство активно используемых платформ.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В ходе выполнения работы по созданию программного обеспечения обработки экспериментальных данных физических диагностик установки КТМ были достигнуты следующие результаты:

1. Проведен анализ методик обработки данных диагностических систем;
2. Проведен анализ математических пакетов, необходимых для написания расчетных элементов;
3. Разработаны расчетные модули обработки экспериментальных данных;
4. Разработано программное обеспечение сервера обработки данных в объеме, достаточном для проведения начального этапа работ установки КТМ.

Вместе с тем, структура разработанного сервера обработки данных, на сегодняшний день является далеко не полной. Вместе с увеличением количества обслуживаемых установок диагностик будет увеличиваться число расчетных модулей СОД, необходимых для обработки экспериментальных данных. Таким образом, для полноценной работы сервера, отвечающей требованиям к качеству и скорости обработки данных, необходимо дальнейшее совершенствование и развитие, как сторонних модулей, так и внутренней архитектуры ПО СОД.

ЛИТЕРАТУРА

1. Лутц, М. Изучаем Python 3 издание, Санкт-Петербург – Москва 2009, стр.848
2. Web-разработка. Базовые технологии [Электронный ресурс] - Режим доступа: <http://habrahabr.ru/blogs/webdev/75248/>
3. Лозовиц, А. XML-RPC: вызов процедур посредством XML [Электронный ресурс] - Режим доступа: http://www.citforum.ru/internet/xml/xml_rpc/

**КТМ ҚОНДЫРҒЫНЫҢ ФИЗИКАЛЫҚ ДИАГНОСТИКАЛАРДЫҢ МӘЛІМЕТТЕРДІ
ӨНДЕУГЕ АРНАЛҒАН БАҒДАРЛАМАМЕН ҚАМТАМАСЫЗ ЕТУ**

Шумайлова О.Н., Колокольцов М.В., Кретинин А.А., Макаров Д.А., Садыков А.Д., Шипилов Д.В.

ҚР ҰЯО Атом энергиясы институты, Курчатов, Қазақстан

КТМ қондырғының физикалық диагностикалар жүйесінің тәжірибелік мәлеметтерді өндеуге арналған бағдарламамен қамтамасыз ету және мәлеметтерді өндеу серверіне есептік модульдерді интеграциясы туралы құрылу үрдісі қарастырылуда.

Құрастырылған бағдарламалық қамтамасыз етуінің сапасы мен жылдамдығы өндеу талаптарына, сонымен қатар қондырғының диагностикалық жүйелерінің ерекшелігі мен мәліметтерді тіркеу файлды жазу форматының бірегейіне жауап береді.

SOFTWARE FOR PROCESSING OF DATA OF PHYSICAL DIAGNOSTICS OF KTM

O.N. Shumailova, M.V. Kolokoltsov, A.A. Kretinin, D.A. Makarov, A.D. Sadykov, D.V. Shipilov

Institute of Atomic energy of NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

Here was presented the process of creation of software for processing of experimental data of physical diagnostics system of KTM and integration of calculating modules into the data processing server.

Developed software satisfies the requirements of quality and speed of processing as well as for particular properties of diagnostics system of plant and format of registered data files.

УДК 669.1'296:539.216.2:543.429.3

**ТЕРМИЧЕСКИ ИНДУЦИРОВАННЫЕ ПРОЦЕССЫ ДИФФУЗИИ
И ФАЗООБРАЗОВАНИЯ В СЛОИСТОЙ СИСТЕМЕ Fe-Ti ПРИ ИЗОХРОННОМ ОТЖИГЕ**¹Манакова И.А., ¹Верешак М.Ф., ¹Сергеева Л.С., ²Сухоруков И.А.,
¹Жанкадамова А.М., ²Русаков В.С., ¹Кадыржанов К.К.¹Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан²Московский государственный университет, Москва, Россия

Методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифракции проведены исследования термически индуцированных процессов диффузии и фазовых превращений в неравновесной слоистой системе Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм) при изохронном отжиге. Получены относительные концентрации фаз и установлена последовательность фазовых превращений в приповерхностных слоях и объеме исследуемой системы. Показано, что в результате взаимодиффузии компонентов происходит образование в контактном слое подложка-покрытие интерметаллидов FeTi и Fe₂Ti. Титан, диффундируя в матрицу подложки, образует твердый раствор на основе α-Fe. Предложен метод определения концентрации атомов примеси замещения в растворе α-Fe по среднему значению сверхтонкого магнитного поля $\overline{H}_n$ на ядрах ⁵⁷Fe. В процессе последовательных термических отжигов система остается слоистой и представлена со стороны подложки твердым раствором Ti в α-Fe с предельной концентрацией, а со стороны покрытия присутствует интерметаллид Fe_{2+x}Ti_{1-x}, обогащенный железом. Представлены результаты компьютерного моделирования термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в исследуемой бинарной системе. Получено хорошее соответствие результатов теоретических расчетов с экспериментальными мессбауэровскими и рентгеновскими данными.

ВВЕДЕНИЕ

В связи с внедрением в производство высоких технологий, все более возрастает необходимость в улучшении физических характеристик и специальных свойств (коррозионной и радиационной стойкости, износостойкости, электромагнитных характеристик и др.) рабочих поверхностей существующих материалов. Очевидно, что такое сочетание свойств не может быть достигнуто традиционными методами легирования, поскольку железо в плане классического легирования имеет ограниченные возможности [1, 2].

Одним из путей решения этих задач является поверхностная модификация металлов путем нанесения на их поверхность тонких покрытий с заданными свойствами. Для направленной модификации приповерхностных свойств металлических материалов широко применяются методы ионно-плазменного нанесения покрытий. Исходное неравновесное пространственное распределение атомных компонентов и последующий термический отжиг приводят к пространственной направленности процесса фазообразования и созданию слоистой системы. Разработка методов получения пространственно неоднородного распределения фаз по глубине образца, стабильного к воздействию температуры, представляет собой важную задачу.

Для исследования процессов диффузии и фазообразования в слоистых системах, полученных методом магнетронного осаждения, представляет интерес бинарная система Fe-Ti. Сплавы Fe-Ti обладают повышенной удельной прочностью, коррозионной стойкостью, износостойкостью, жаропрочностью и другими положительными свойствами, что позволяет использовать их в различных областях техники. В

связи с этим бинарная система Fe-Ti изучалась многими исследователями. Опубликовано большое количество оригинальных работ и ряд обзоров [3, 4]. Обзор ранних работ по исследованию сплавов системы Fe-Ti со стороны, богатой железом, содержится в работе [5]. Различные варианты диаграмм равновесного состояния бинарной системы Fe-Ti приведены в [4]. Однако направленность, кинетика и механизм процессов диффузии и фазовых преобразований, а также локальная структура продуктов превращений при термической обработке слоистой системы Fe – Ti имеют ряд особенностей и до сих пор не достаточно изучены.

В работах [6, 7] сформулировано и экспериментально проверено необходимое условие создания термически стабильных поверхностных слоев, содержащих заданную фазу. На примере слоистой системы Fe-Fe показано, что если концентрация примеси в твердом растворе α-Fe достигает предела растворимости ($C_{пр}$) при заданной температуре отжига ($T_{отж}$), т.е. диффузионный поток компонентов между двухфазной областью и областью твердого раствора станет равным нулю, то данная слоистая система будет термически стабильной при данной температуре $T_{отж}$.

Целью настоящей работы явилось исследование термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе Fe(10мкм) – Ti(2мкм) методами мессбауэровской спектроскопии с привлечением рентгенофазового анализа и теоретического описания экспериментальных результатов с помощью компьютерного моделирования.

Использование в качестве подложки железа позволяет в полной мере применять уникальные методические возможности методов мессбауэровской

спектроскопии. Комбинируя два метода мессбауэровской спектроскопии - регистрацию γ -квантов в геометрии на прохождение и регистрацию электронов конверсии в геометрии обратного рассеяния, можно получить качественную и количественную информацию о происходящих фазовых и структурных превращениях в приповерхностных слоях и объеме образца.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для приготовления образцов использовался чистый йодидный титан и армко-железо чистотой 99,8 ат. % Fe. Подложки для исследований были приготовлены прокаткой на вальцах пластины α -Fe до толщины 10 мкм с последующим рекристаллизационным отжигом при температуре 850°C в вакууме 1×10^{-7} мм. рт. ст. в течение 3-х часов. Нанесение титана на фольги проводилось методом магнетронного осаждения на ионно-плазменной установке «Аргмак» [11]. Образцы, предназначенные для нанесения покрытия, размещались на массивном медном держателе, что обеспечивало температуру на образце менее 150°C. Для лучшей адгезии поверхность образцов перед нанесением покрытия подвергали травлению ионами аргона. Толщина напыленного слоя титана подбиралась так, чтобы в процессе отжига диффузионная пара в соответствии с равновесной диаграммой состояния при температурах ниже температуры полиморфного превращения α -Ti $\leftrightarrow$ β -Ti (882°C) находилась в двухфазной области α -Fe (Ti) – Fe₂Ti. Толщина покрытия определялась по току и времени осаждения и контролировалась весовым методом. Для проведения исследований была приготовлена слоистая система Fe(10 мкм) – Ti(2 мкм), соответствующая средней концентрации титана в объеме образцов ~ 12 ат. % при условии его полного растворения [3]. Полученные таким путем образцы были подвергнуты последовательным изохронным отжигам в течение 2 часов при температурах до 1000°C с шагом 50°C в вакуумной печи с остаточным давлением 1×10^{-7} мм. рт. ст. Температура контролировалась хромель-алюмелевой термопарой с точностью $\pm 10^\circ\text{C}$. Скорость нагрева составляла 10°C в минуту, охлаждение образцов осуществлялось вместе с печью. После каждого этапа отжига образцы подвергались исследованиям с помощью метода ядерной γ -резонансной спектроскопии и рентгеновской дифрактометрии.

Измерение мессбауэровских спектров проводили на спектрометре MS-110Em при комнатной температуре путем регистрации γ -квантов в геометрии на пропускание. Источником γ -квантов служил ^{57}Co в матрице хрома. Калибровку спектрометра осуществляли по эталонному образцу α -Fe. Обработку мессбауэровских спектров выполняли с помощью программного комплекса MSTools методами модельной расшивки и восстановления функций

распределения сверхтонких параметров парциальных спектров [12].

Рентгеновскую дифрактометрию использовали в качестве дополнительного метода. Измерения проводили на дифрактометре D8ADVANCE с излучателем Cu-K α в геометрии Брэгга-Брентано с обеих сторон образца. Для идентификации кристаллических фаз использовали картотеку порошковых рентгенограмм ASTM и 7CPDS. По результатам обработки мессбауэровских спектров и рентгенограмм определяли относительные интенсивности парциальных спектров фаз и относительные интенсивности соответствующих им дифракционных рефлексов.

Для теоретических расчетов процессов диффузии и фазообразования в слоистой бинарной системе Fe-Ti использовали компьютерное моделирование на основе данных о термодинамических свойствах и фазовых диаграммах многокомпонентных систем. Физическая модель процессов диффузии и фазообразования в слоистых бинарных металлических системах, основанная на феноменологической теории диффузии Даркена и механизме взаимной диффузии компонентов по непрерывным каналам фаз в двухфазных областях системы, подробно изложена в работах [8-10]. Модель реализована в виде компьютерной программы DIFFUSION. Для ее разработки использовалась среда программирования Microsoft Visual Studio. Основные функциональные возможности программы: использование произвольной диаграммы равновесных состояний бинарной системы; задание любого количества слоев с произвольной концентрацией компонентов; реализация произвольных температурно-временных режимов термических отжигов; расчет на всех этапах процесса относительных интенсивностей парциальных мессбауэровских спектров, полученных регистрацией γ -квантов в геометрии на прохождение, и регистрацией конверсионных электронов в геометрии обратного рассеяния, а также относительного содержания фаз в атомных единицах компонентов в области проникновения в слоистую систему рентгеновского излучения. Вариация задаваемых параметров, определяющих свойства слоистой бинарной системы и условия последовательных термических отжигов, позволяет моделировать термически индуцированные процессы диффузии и фазообразования как в модельных слоистых системах, так и в слоистых системах, которые специально созданы и экспериментально исследованы.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 1 представлены характерные мессбауэровские спектры на ядрах ^{57}Fe в слоистой системы Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм). На этом же рисунке показаны результаты восстановления функции распределения сверхтонкого магнитного поля до и после отжигов. Обработка мессбауэровских спектров проводилась с учетом лишь магнитной составляющей в суммарном спектре. Появление сателлитов в центре разностного спектра указывает на присутствие и парамагнитной

фракции. Анализ спектров показал, что отжиг до 600°C включительно не приводит к изменениям параметров сверхтонких взаимодействий. Изменения фазового состава в образце наблюдаются после отжига при $T_{отж} = 650^\circ\text{C}$. На фоне секстета от $\alpha\text{-Fe}$ в центральной части спектра появляется одиночная линия, которая по мере увеличения температуры отжига трансформируется в квадрупольный дублет. Получены следующие значения сверхтонких параметров:

$\delta_1 = -0.150 \pm 0.005 \text{ мм/с}$ для синглета и $\delta_2 = -0.281 \pm 0.012 \text{ мм/с}$, $\varepsilon_2 = 0.202 \pm 0.012 \text{ мм/с}$ для дублета (δ – изомерный сдвиг, ε – квадрупольное смещение).

Сравнение параметров сверхтонких взаимодействий с литературными данными [13, 14] позволяет идентифицировать образовавшиеся фазы как интерметаллические соединения FeTi и Fe_2Ti , соответственно. Увеличение температуры отжига приводит к уширению парциального спектра Fe_2Ti , что указывает на магнитное упорядочение в этом интерметаллиде.

Nakamichi в своих исследованиях [15] показал, что магнитные свойства Fe_2Ti очень чувствительны к стехиометрии. Он установил, что железобогатенный интерметаллид (30.8 – 32.2 ат.% Ti) является ферромагнетиком, тогда как титанобогатенный (33.30 – 35.2 ат.% Ti) – антиферромагнетиком. Момент насыщения в ферромагнитной области пропорционален отклонению от стехиометрии, и точка Кюри сдвигается в сторону высоких температур с увеличением избыточного железа. В работе [16] исследования по эффекту Мессбауэра и магнитной восприимчивости однофазного интерметаллида $\text{Fe}_{2+x}\text{Ti}_{1-x}$ подтвердили открытие Nakamichi о чрезвычайной чувствительности свойств этого соединения к отклонениям от стехиометрии. Авторы этой работы показали, что выше температуры Нееля антиферромагнитный обогащенный титаном интерметаллид имеет мессбауэровский спектр в виде узкого дублета. Ферромагнитный обогащенный железом интерметаллид имеет дополнительные компоненты и очень уширенный спектр. Это означает, что Fe_2Ti в нашем случае в основном антиферромагнитен, и что ферромагнетизм Fe_2Ti появляется из-за атомов железа, расположенных в позициях титана.

На рисунке 2 приведена центральная часть мессбауэровских спектров, представленных на рисунке 1. Здесь же показаны функции распределения квадрупольного смещения $p(\varepsilon)$ и сверхтонкого магнитного поля $p(H_n)$ на ядрах ^{57}Fe соединений FeTi и Fe_2Ti в слоистой системе Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм) после изохронного отжига. Видно, что уже на ранних стадиях отжига (700°C) при взаимной диффузии $\text{Fe} \leftrightarrow \text{Ti}$ образуется интерметаллид $\text{Fe}_{2+x}\text{Ti}_{1-x}$ ($x < 0$). Резонансные линии квадрупольного дублета почти не уширены. Дальнейший отжиг приводит к образованию обогащенного железом интерметаллида $\text{Fe}_{2+x}\text{Ti}_{1-x}$ ($x > 0$). При $T_{отж} \geq 800^\circ\text{C}$ наблюдается уширение спектров, которое появляется из-за фракций

из атомов железа со сверхтонкой магнитной структурой. Видно также, что интенсивность квадрупольного дублета от атомов ^{57}Fe сначала увеличивается, достигая максимума при 800°C, и полностью исчезает при 900°C отжига. Известно [3], что область гомогенности фазы Fe_2Ti довольно широкая и распространяется от 68.5 до 77% Fe. Приведенные рассуждения подтверждаются данными, полученными с помощью рентгеновской дифрактометрии. Постоянные решетки (a и c) фазы Fe_2Ti с увеличением $T_{отж}$ неуклонно уменьшаются от $a = 4.7876 \pm 0.0003 \text{ \AA}$, $c = 7.7922 \pm 0.0011 \text{ \AA}$ до $a = 4.7811 \pm 0.0014 \text{ \AA}$, $c = 7.7831 \pm 0.0058 \text{ \AA}$. Отношение c/a при этом остается постоянным.

На рисунке 3 приведена центральная часть мессбауэровских спектров и функции распределения квадрупольного смещения $p(\varepsilon)$ и сверхтонкого магнитного поля $p(H_n)$ на ядрах ^{57}Fe в образце Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм), отожженном при температуре 1000°C и снятом при температурах выше и ниже температуры Кюри. Полученные результаты подтверждают наличие ферромагнетизма в интерметаллиде $\text{Fe}_{2+x}\text{Ti}_{1-x}$. Переход из магнитного в парамагнитное состояние для образовавшегося состава при взаимодиффузии $\text{Fe} \leftrightarrow \text{Ti}$ происходит при температуре $\sim 150^\circ\text{C}$. Разностный спектр, приведенный на рисунках 2 и 3, подтверждает приемлемость выбора модели обработки.

Анализ результатов обработки мессбауэровских спектров (рисунок 1) показывает, что происходит уменьшение среднего значения эффективного магнитного поля $\bar{H}_n$ и возрастание стандартного отклонения $S_{p(H_n)}$ с увеличением температуры отжига. Более того, для всех полученных спектров обнаружена практически линейная корреляционная зависимость дисперсии $S_{p(H_n)}^2$ функции распределения $p(H_n)$ от среднего значения эффективного магнитного поля $\bar{H}_n$, которая изображена на рисунке 4. На рисунке сплошной и штриховыми линиями показаны результаты расчета по формуле

$$S_{p(H_n)}^2 = \frac{(330.4 - \bar{H}_n)(8 \cdot \Delta H - (330.4 - \bar{H}_n))}{8}, \quad (1)$$

при $\Delta H = 20, 21$ и 22 кЭ . Эта формула справедлива в предположении о том, что эффективное магнитное поле H_n на ядре атома железа определяется в основном первой координационной сферой и аддитивно зависит от числа расположенных на ней атомов Ti, которые случайным образом распределены по позициям кристаллической решетки $\alpha\text{-Fe}$ [17].

Наблюдаемое хорошее соответствие экспериментальных и расчетных данных показывает, что определяющим условием изменения среднего значения поля $\bar{H}_n$ и дисперсии $S_{p(H_n)}^2$ распределения $p(H_n)$ от температуры отжига является изменение concentra-

ции атомов Ti в матрице α -Fe. Следовательно, такое изменение можно использовать для определения средней концентрации C_{Ti} . В верхнем правом углу (рисунок 4.) приведена взаимосвязь концентрации C_{Ti} и среднего значения эффективного магнитного поля $\bar{H}_n$, с помощью которой можно оценить концентрацию Ti в растворе α -Fe(Ti). График построен в соответствии с формулой:

$$C_{Ti} = \frac{330.4 - \bar{H}_n}{8 \cdot \Delta H_n} \cdot 100\% . \quad (2)$$

На рисунке 5 представлена зависимость концентрации Ti в твердом растворе на основе α -Fe от температуры изохронного отжига. Штриховой линией показана концентрация, рассчитанная по описанному выше способу. Сплошной линией – концентрация, при расчете которой использован анализ функции распределения сверхтонкого магнитного поля $p(H_n)$. В этом случае в соответствии с биномиальным распределением была использована формула (см., например, [17])

$$C_{Ti} = \frac{I_1 / I_0}{8 + I_1 / I_0} \cdot 100\% , \quad (3)$$

где I_1 – интенсивность секстета с полем H_1 (относящегося к атомам железа, в первой координационной сфере которых присутствует один атом Ti); I_0 – интенсивность секстета с полем H_0 (относящегося к атомам железа, в первой координационной сфере которых нет атомов Ti). Как видно на рисунка, оба способа расчета приводят к практически одинаковому результату, что дает основание использовать при расчете концентрации любой из них.

На рисунке 6 приведены рентгеновские дифрактограммы слоистой системы Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм), снятые после последовательных отжигов с обеих сторон образца. Как и в случае мессбауэровских исследований, рентгеновская спектроскопия не обнаруживает образования новых фаз при температурах отжига до 600°C. Однако, при отжиге 600°C резко возрастают параметры кристаллической решетки α -Ti: от $a = 2.9473 \pm 0.0017 \text{ \AA}$, $c = 4.6854 \pm 0.0034 \text{ \AA}$ до $a = 2.9584 \pm 0.0019 \text{ \AA}$, $c = 4.7627 \pm 0.0038 \text{ \AA}$. Это объясняется следующим. Известно [18], что железо относится к группе "быстро диффундирующих" примесей в титане, поэтому на ранних стадиях отжига происходит диффузия атомов железа в матрицу покрытия. Как было замечено в [4], растворимость железа в α -Ti в равновесных условиях очень низкая и примесные атомы почти не вызывают изменений параметров кристаллической решетки α -Ti. Наблюдая увеличение параметров решетки α -Ti и учитывая атомные радиусы компонентов (1.46 Å для α -Ti и 1.26 Å для α -Fe) [19], можно предположить, что при $T_{отж} = 600^\circ\text{C}$ образуется пересыщенный твердый раствор внедрения атомов железа в кристаллическую решетку α -Ti.

На рисунке 7 приведены зависимости относительных интенсивностей парциальных мессбауэровских спектров и относительных интенсивностей дифракционных рефлексов для образующихся фаз от температуры изохронного отжига. Ясно видно качественное согласие результатов, полученных методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифракции. Из рисунка видно, что максимальное содержание интерметаллида FeTi наблюдается после отжига при $T_{отж} = 700^\circ\text{C}$. По данным рентгеновской дифрактометрии параметр a постоянной кубической решетки соединения FeTi с повышением температуры отжига уменьшается (от $2.9813 \pm 0.0011 \text{ \AA}$ до $2.9772 \pm 0.0003 \text{ \AA}$). Это возможно в том случае, когда происходит нарушение стехиометрии в сторону большего содержания железа в этом соединении. Учитывая то, что область гомогенности FeTi очень узкая [3], дальнейший отжиг приводит к его распаду и росту более железосодержащей фазы Fe₂Ti. Образование интерметаллида Fe₂Ti сопровождается зарождением и ростом количества твердого раствора Ti в α -Fe. Изменение параметра постоянной решетки α -Fe как со стороны покрытия, так и со стороны подложки, ясно указывает на то, что и титан диффундирует в матрицу железа с образованием твердого раствора по всему объему образца. Однако, как показывает рентгеновская дифрактометрия, формирование интерметаллидных фаз со стороны подложки во всем температурном интервале изохронного отжига не наблюдается. Этот экспериментальный результат показывает, что интерметаллидные фазы образуются вследствие взаимодиффузии Fe $\leftrightarrow$ Ti в контактном слое подложка-покрытие, а твердый раствор α -Fe(Ti) – вследствие диффузии Ti в α -Fe.

Моделирование термически индуцированных процессов диффузии и фазообразования в слоистой системе α -Fe(10 мкм)–Ti(2 мкм) осуществлялось с учетом всех особенностей фазовой диаграммы состояний бинарной системы Fe-Ti [4, 20]. Частотные факторы D^0 и энергии активации Q^0 для парциальных коэффициентов диффузии подбирались с целью наилучшего описания экспериментальных данных и для обоих компонентов принимались одинаковыми ($D_{Ti}^0 = D_{Fe}^0 = 2.0 \times 10^4 \text{ мкм}^2/\text{с}$,

$Q_{Ti}^0 = Q_{Fe}^0 = 1.6 \times 10^5 \text{ Дж/моль}$). Вероятности эффекта Мессбауэра на ядрах ^{57}Fe в различных фазах бинарной системы, также как и все рентгеновские характеристики компонентов, считались близкими по величине. В частности эффективные глубины d_{eff}^{Fe} и d_{eff}^{Ti} проникновения рентгеновского пучка для обоих компонентов принимались равными 3 мкм.

Результаты численного моделирования показаны на рисунке 8. Все особенности термически индуцированного процесса диффузии и фазообразования (температурная последовательность фазообразования, относительное содержание образованных фаз) в

слоистой системе α -Fe(10 мкм)–Ti(2 мкм), наблюдаемые экспериментально (рисунок 7) при последовательных изохронных отжигах, хорошо описываются теоретически в рамках предложенных физических представлений. Таким образом, использованная в работе физическая модель расчета процессов диффузии и фазообразования в слоистых бинарных металлических системах показывает, что компьютерное моделирование позволяет до проведения эксперимента оценить все основные особенности процессов, происходящих в бинарной системе при термической обработке.

Выводы

Методами мессбауэровской спектроскопии на ядрах ^{57}Fe , рентгенофазового анализа, с привлечением компьютерного моделирования проведены исследования термически индуцированных процессов диффузии и фазовых превращений в слоистой системе Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм) при последовательных двухчасовых изохронных отжигах от 20° до 1000°С с шагом 50°С в вакууме. В результате проведенных исследований:

1. Установлена последовательность фазовых преобразований и получена информация об относительном содержании фаз, формирующихся в образцах на каждом из этапов отжига; показано, что направленность фазовых превращений определяется изменением локальной концентрации компонентов в процессе их взаимной диффузии в образце и соответствует особенностям фазовой диаграммы равновесного состояния бинарной системы Fe-Ti;

2. Показано, что в результате взаимодиффузии компонентов происходит образование в контактном слое подложка-покрытие интерметаллидов FeTi и Fe₂Ti; титан диффундирует в матрицу подложки, распространяясь по всему объему образца с образованием твердого раствора на основе железа;

3. Обнаружено коррелированное изменение среднего значения и дисперсии функции распределения сверхтонкого магнитного поля на ядрах ^{57}Fe в твердом растворе α -Fe(Ti) с изменением концентрации примеси; предложен метод определения концентрации атомов Ti в растворе α -Fe по среднему значению сверхтонкого магнитного поля $\overline{H}_n$ на ядрах ^{57}Fe .

4. В процессе последовательных термических отжигов система остается слоистой и представлена со стороны подложки твердым раствором титана в α -Fe с предельной концентрацией, а со стороны покрытия присутствует интерметаллид Fe_{2+x}Ti_{1-x}, обогащенный железом.

5. Результаты компьютерного моделирования процессов диффузии и фазообразования в слоистой бинарной системе Fe-Ti при последовательных изохронных отжигах хорошо отражают экспериментальные данные, полученные методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеновской дифракции. Следовательно, моделирование термически индуцированных процессов позволяет до проведения эксперимента оценить все основные особенности, происходящие в слоистой металлической системе, а также предсказать, достигнет ли эта система состояния термической стабильности.

ЛИТЕРАТУРА

1. Гудремон, З. Специальные стали / З. Гудремон. - М.: Металлургия, 1966. - Т.1, - 736 с.
2. Ульянов, Е.А. Высоколегированные сплавы на основе железа и никеля / Е.А. Ульянов, Т.Г. Свистунова. - М.: Металлургия, 1986. - 350с.
3. Вол, А. Е. Строение и свойства двойных металлических систем / А. Е. Вол. - М.: Госиздат физ.-мат. литературы, 1962. - Т.2, - С. 984.
4. Корнилов, И. И. Титан / И.И. Корнилов. - М.: Наука, 1975. - 310 с.
5. Хансен, М. Структура бинарных сплавов / Хансен М. - ГОНТИ, 1941. - Т.2, 716 с.
6. Kadyrzhanov, K.K. Mossbauer study of thin iron film beryllization / K. K. Kadyrzhanov, V. S. Rusakov, T. E. Turkebaev, M. F. Vereshchak, E. A. Kerimov, D. A. Plaksin // Hyperfine Interactions.- 2002. - V. 141-142, № 1-4. - P. 453
7. Кадыржанов, К.К. Мессбауэровские исследования фазообразования в слоистых системах железо-бериллий / К.К. Кадыржанов, Э.А. Керимов, Д.А. Плаксин, В.С. Русаков, Т.Э. Туркебаев // Поверхность, 2003. - №8. - С. 74-78.
8. Русаков, В.С. Механизм термической стабилизации слоистых металлических систем / В.С. Русаков, К.К. Кадыржанов, Т.Э. Туркебаев // Известия РАН. - 2005. - Т. 69, № 10. - С. 1482-1487.
9. Kadyrzhanov, K.K. Thermal stabilization of phase and structural state in binary lamellar metallic systems / K.K. Kadyrzhanov, V.S. Rusakov, T.E. Turkebaev // J. Phys.: Condens. Matter. - 2006. - V. 18. - P. 4113-4126.
10. Русаков, В.С. Физическая модель процессов диффузии и фазообразования в бинарных слоистых системах / В.С. Русаков, К.К. Кадыржанов, Т.Э. Туркебаев, Д.А. Плаксин, А.М. Жанкадамова // Поверхность. - 2006. - №.1. - С. 33-40.
11. Кадыржанов, К.К. Физические основы ионных технологий создания стабильных многослойных металлических систем / К.К. Кадыржанов, Т.Э. Туркебаев, А.Л. Удовский. - Алматы: ИЯФ НЯЦ РК, 2001. - 315 с.
12. Русаков, В.С. Мессбауэровская спектроскопия локально неоднородных систем / В.С. Русаков. - Алматы: ОПНИ ИЯФ НЯЦ РК, 2000. - 431 с.
13. Шевчук, Ю.А. Взаимная диффузия в β -фазах систем Ti-Ni и Ti-Fe / Ю.А. Шевчук // Неорганические материалы. - 2004. - Т. 40, № 4, - С. 445.
14. Сергеева, Л.С. Исследование кинетики формирования фаз на поверхности Fe-Ti сплава с титановым покрытием / Л.С. Сергеева, М.Ф. Верещак, И.А. Манакова, В.И. Антонюк, В.С. Русаков, К.К. Кадыржанов // Вестник НЯЦ РК. - 2006. - Вып. 4(28). - С. 28-36.

15. Nakamichi, T. Ferro- and Antiferromagnetism of the Laves Phase Compound in Fe-Ti Alloy System / T. Nakamichi // J. Phys. Soc. Japan. - 1968. - V. 25. - P. 1789.
16. Wertheim, G. Model for the composition-dependent ferromagnetic to antiferromagnetic transition in Fe₂Ti / G. Wertheim, J. Wernick, R. Sherwood // J. Appl. Phys. - 1970. - Vol. 41, №3. - P. 1325-1326.
17. Кадыржанов, К.К. Ионно-лучевая и ионно-плазменная модификация материалов / К.К. Кадыржанов, Ф.Ф. Комаров, А.Д. Погребняк, В.С. Русаков, Т.Э. Туркбаев. - М.: МГУ, 2005. - 640 с.
18. Титановые сплавы: сб. ст. / Отв. ред. Б. А. Галицкий. - М.: Наука, 1968. - 340 с.
19. Рабинович, В.А. Краткий химический справочник / В.А. Рабинович, З.Я. Хавин. - Л.: Химия, 1978. - С. 21.
20. Диаграммы состояния двойных металлических систем: справочник / Отв. ред. Н. П. Лякишев. - М.: Машиностроение, 1997. - Т.2, 569 с.

ИЗОХРОНДЫ ҚЫЗДЫРЫП ЖАСЫТУДАҒЫ Fe-Ti ҚАБАТТЫ ЖҮЙЕДЕГІ ДИФфуЗИЯЛЫҚ ЖӘНЕ ФАЗАҚАЛЫПТАСТЫРУДАҒЫ ТЕРМИЯЛЫҚ ИНДУКЦИЯЛАНҒАН ПРОЦЕССТЕР

¹Манакова И.А., ¹Верещак М. Ф., ¹Сергеева Л.С., ²Сухоруков И.А.,
¹Жанкадамова А.М., ²Русаков В.С., ¹Кадыржанов К. К.

¹ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан
²Москваның мемлекеттік университеті, Москва, Ресей

Изохронды қыздырып жасытудағы Fe (10 мкм) – Ti (2 мкм) бір қалыпты емес қабатты жүйедегі диффузиялық және фазалық өзгерудің термиялық индукцияланған процесстерін Мессбаурдің спектроскопия және рентгендік дифракция әдістерімен зерттеуі келтірілген. Зерттелетін жүйе көлемінде және жоғары жақ қабаттарында фазалық өзгерудің тізбектелуі анықталды және фазалық салыстырмалы концентрациясы алынды. Компоненттерінің өзара диффузиясының әсерінен FeTi және Fe₂Ti интерметаллидтердің қапталған – төселген контактілі қабатта қайта пайда болады. Титан төселген матрицаны бөлшектей ете отырып, α-Fe негізінде қатты ерітінді жасайды. ⁵⁷Fe ядросының негізінде өте жіңішке магнитті өрістің $\overline{H}_n$ орта мәні бойынша α-Fe ерітіндісінің қоспа атомдарының концентрациясын анықтай әдісін ұсынылды. Тізбекті түрде қыздырып жасытудағы жүйе қабатты түрін сақтайды және төселгіш жағынан Ti –н α-Fe қатты ерітіндінің шектелген концентрациясы, ал қапталуы жағынан темірі басым интерметаллид Fe_{2+x}Ti_{1-x}-тің бар екенін көрсетілді. Бинарлық жүйеде диффузиялық және фазалық өзгерудің термиялық индукцияланған процесстерінің компьютерлі модельдеуінің нәтижелері берілген зерттеуі келтірілген. Тәжірибеде алынған Мессбаур және рентгеннің берілгендері теориялық есептердің нәтижесімен жақсы сай келеді.

THERMALLY INDUCED DIFFUSION AND PHASES FORMATION PROCESSES IN THE LAMELLAR SYSTEM Fe-Ti AT ISOCRONOUS ANNEALING

¹I.A. Manakova, ¹M.F. Vereschak, ¹L.S. Sergeeva, ²I.A. Suchorukov,
¹A.M. Zhankadamova, ²V.S. Rusakov, ¹K.K. Kadyrzhanov

¹The Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan
²Moscow State University, Moscow, Russia

Mössbauer spectroscopy and X-ray diffraction methods were used to investigate thermally induced diffusion and phase formation processes in the non-equilibrium lamellar system Fe (10 μm) – Ti (2 μm) subjected to isochronous annealing. The relative concentrations of formed phases and sequence of phase transformations in near-surface layers and bulk of the investigated lamellar system have been identified. It has been shown that mutual diffusion of components in the lamellar system results in formation of intermetallics FeTi and Fe₂Ti in the substrate-coating contact layer. Titanium diffuses into α-Fe matrix forming solid solution α-Fe(Ti). The definition method of substitution impurity atoms concentration in α-Fe solution by using average value of hyperfine magnetic field $\overline{H}_n$ on ⁵⁷Fe nuclei was offered. In the process of consistent thermal annealing the system preserves the lamellar structure with the substrate-facing side represented by solid titanium solution in α-Fe with ultimate titanium concentration, and with additional iron-enriched intermetallic Fe_{2+x}Ti_{1-x} at the coating-facing side. The results of computer simulations of thermally induced diffusion and phase formation processes in the investigated binary system are presented. The good agreement of theoretical calculations with Mössbauer and X-ray diffraction results has been achieved.

УДК: 539.21:539.12.04:669.3

НЕКОТОРЫЕ ОСОБЕННОСТИ ОБРАТНОГО МАРТЕНСИТНОГО $\alpha' \rightarrow \gamma$ -ПРЕВРАЩЕНИЯ В СТАЛИ 12X18H10T, ОБЛУЧЕННОЙ ДО ВЫСОКИХ ПОВРЕЖДАЮЩИХ ДОЗ В БЫСТРОМ РЕАКТОРЕ БН-350¹Максимкин О.П., ²Мережко М.С., ²Рубан С.В., ³Рахашев Б.К.¹Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан²Академический инновационный университет, Шымкент, Казахстан

Обнаружен эффект дополнительного увеличения содержания ферромагнитной фазы при отжиге в районе 400°C облученной (56 сна) нейтронами и α -частицами ($\sim 10^{18}$ част/см²) деформированной стали 12X18H10T. Аналогический эффект наблюдали также при отжиге стали 12X18H10T, непосредственно после облучения до 58 сна без дополнительной деформации.

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что нержавеющие аустенитные стали парамагнитны (γ -аустенит), но интенсивное внешнее воздействие (пластическая деформация [1], облучение [2]) в результате мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ -перехода приводит к образованию в них ферромагнитной α' -фазы. При определенных условиях (например, холодная прокатка) можно добиться 100% содержания α' -мартенсита в материале. Высокотемпературный нагрев холоднодеформированных сталей инициирует развитие обратного $\alpha' \rightarrow \gamma$ мартенситного перехода, в результате которого при температурных отжиге выше 600-800°C α' -фаза исчезает и образуется фазово-наклепанный аустенит [3].

В то же время в ряде работ [4,5] отмечается, что в процессе отжига аустенитных сталей, деформированных при криогенных температурах, количество α' -фазы не только не уменьшается, но даже несколько увеличивается в районе температуры 400°C. Установлено также, что нагрев хромоникелевых нержавеющих сталей типа 18-10 в интервале температур 300-700°C после пластической деформации в жидком азоте существенно повышает твердость материала [6,7], изменяет структуру и электрическое сопротивление [8] сталей. Аномальное увеличение электросопротивления стали 12X18H10T с мартенситом при отжиге в районе 400°C авторы [8] объясняют формированием в решетке богатых хромом сферических зон Гинье-Престона критического размера ($\sim 13\text{\AA}$), приводящих к сильному рассеянию электронов проводимости.

В калориметрических экспериментах [9,10] обнаружено, что процессы отжига в деформированных аустенитных сталях сопровождаются также тепловыми эффектами. При этом показано [10], что в интервале температур 100-450°C происходит выделение, а в интервале 450-850°C – поглощение тепла. В соответствии с результатами работы [11] поглощение энергии связано с протеканием обратного мартенситного превращения, при котором уменьшается объем, что выражается в замедлении термического расширения образца, регистрируемого дилатометрическим методом.

Исследование $\alpha' \rightarrow \gamma$ -превращения в стали 12X18H10T методами мессбауэровской спектроскопии и рентгеноструктурного анализа показало [12], что при изохронных (1 час) отжиге пластины стали 12X18H10T, прокатанной при 20°C от 300 до 30 мкм, имели место особенности динамики изменения распределения сверхтонкого поля ($H_{\text{эфф}}$) атомов Fe в решетке α' -мартенсита, которые обнаруживаются при температуре отжига 400°C. До этой температуры происходит рост $H_{\text{эфф}}$, тогда как дальнейшее увеличение температуры отжига ведет к уменьшению $H_{\text{эфф}}$. Наряду с тем при $T=400^\circ\text{C}$ установлено резкое увеличение скорости образования фазово-наклепанного аустенита.

Принимая во внимание то обстоятельство, что изменение физико-механических свойств металлических материалов, подвергнутых холодной деформации, имеет некоторое сходство с облученными тяжелыми ядерными частицами, целесообразно проанализировать температурные изменения структуры и свойств нержавеющих сталей, широко используемых в реакторостроении. Это тем более интересно, поскольку в целом ряде случаев отмечалось возникновение ферромагнетизма в облученных аустенитных нержавеющих сталях, причем это явление связывалось с выделением α' -фазы при воздействии облучения [13, 14]. Так, интересные результаты получены в работе [17], где исследовали материалы оболочек отработавших ТВЭЛов с целью выявления причин возникновения ферромагнитных свойств у облученных аустенитных сталей и изучения их температурной стабильности. Оказалось, что для стали X16H15M3Б (х.д.), облученной до 55 сна, характер изменения намагниченности и распухания по высоте ТВЭЛов примерно одинаков: кривые имеют колоколообразный вид, а максимальные значения этих величин лежат в одном и том же интервале температур – 400-430°C. Необходимо отметить, что после дополнительного отжига при 430°C намагниченность стальных облученных образцов резко возрастала.

Таким образом изучение процессов, протекающих при отжиге деформированных и облученных аустенитных хромоникелевых сталей, показало, что об-

щим для них является $\alpha' \rightarrow \gamma$ -превращение, которое в отдельных случаях сопровождается образованием дополнительного количества ферромагнитной α' -фазы. При этом данный эффект регистрируется, как правило, в интервале температур 400–450°C. Ранее при отжигах образцов стали 12X18H10T, облученных в реакторе ВВР-К, этот эффект обнаружен не был [18]. В этой связи представляло определенный интерес продолжить исследования эффекта дополнительного роста намагниченности при отжиге деформированных и/или облученных стальных образцов, используя преимущественно сталь одного химического состава.

ОБЪЕКТЫ И МЕТОДЫ ИССЛЕДОВАНИЯ

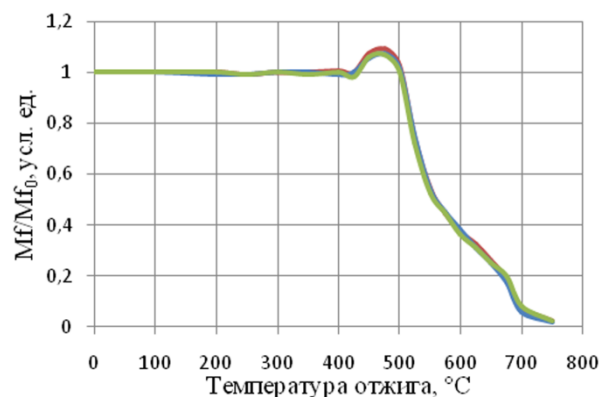
Исследовали нержавеющую хромоникелевую сталь 12X18H10T, необлученную, в аустенизированном состоянии (1050°C 30 мин), а также облученную на изохронном циклотроне У-150 альфа-частицами с начальной энергией 50 МэВ и быстрыми нейтронами в реакторе БН-350. В последнем случае в качестве образцов использовали стальные пластины, вырезанные из стенок чехлов отработавших тепловыделяющих сборок, которые разделявали в «горячих» камерах. В отдельных случаях для сравнения исследовали реакторную сталь 08X16H1M3, характеризующуюся более высокой энергией дефекта упаковки.

В связи с применением различных методик испытания и облучения использовали образцы разных типов: цилиндрические, гантелеобразные, пластинчатые, в виде двойной лопатки (для механических испытаний, которые проводили на установке Инстрон 1195). Пострадиационные и постдеформационные изохронные (30 мин) отжижки выполняли в печи СУОЛ-0442M2 в интервале температур 200–800°C. Во время эксперимента печь нагревалась до необходимой температуры, после чего в нее помещалась вакуумированная колба с образцами. Скорость нагрева образца до заданной температуры составляла: 400°C – 15,8 с/мин, 600°C – 30,5 с/мин, 800°C – 65 с/мин. Количество ферромагнитной α' -фазы в образцах контролировали с помощью феррозонда «Feritscope MP-30».

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Низкотемпературное растяжение

Необлученные аустенизированные (1050°C, 30 мин) образцы стали 12X18H10T деформировали путем статического растяжения со скоростью $2 \cdot 10^{-4}$ сек⁻¹ при низких температурах испытаний (-20, -60, -100°C). Деформированные образцы отжигали в интервале 20–800°C с шагом 50°C до температуры 400°C и с шагом 25°C после 400°C. На каждом этапе растяжения измеряли содержание ферромагнитной фазы в образцах. Полученные результаты приведены на рисунке 1, из которых следует прежде всего, что при отжиге всех холоднодеформированных стальных образцов в районе температуры 450°C содержание ферромагнитной фазы возрастает несколько выше среднего значения.



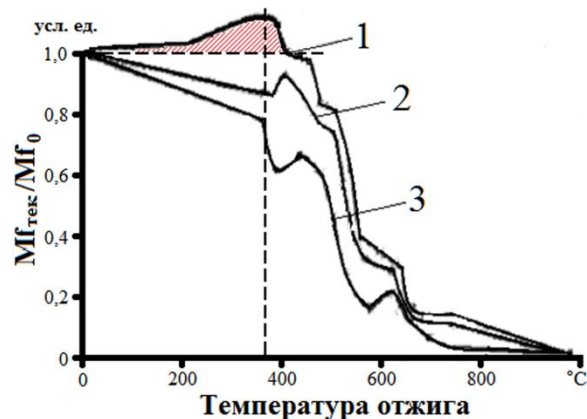
Температура испытания: Красный – -20°C, синий – -60°C, зеленый – -100°C (На рисунке кривые совпали).

Рисунок 1. Изменение относительного содержания ферромагнитной фазы при отжиге образцов стали 12X18H10T, деформированных при различных температурах

Обращает на себя внимание тот факт, что кривые отжига для всех 3-х температур испытания совпали. Заметим также, что аналогичные кривые получены для всех точек на рабочей длине деформированных образцов.

Циклотронное облучение

Исследовали плоские образцы стали 12X18H10T для механических испытаний, которые после аустенизации (1050°C, 30 мин) облучали пучком ускоренных α' -частиц с энергией 50 МэВ 72 минуты (№ 111) и 13 часов (№ 67). Необлученные и облученные образцы деформировали при комнатной температуре, а затем отжигали, контролируя содержание в них α' -мартенсита, индуцированного деформацией. Результаты экспериментов приведены на рисунке 2.



Состояние материала: 1 – облученный (альфа-частицы 50 МэВ, 780 мин); 2 – необлученный; 3 – облученный альфа-частицами (50 МэВ, 72 мин)

Рисунок 2. Температурные изменения содержания α' -фазы в деформированных образцах стали 12X18H10T

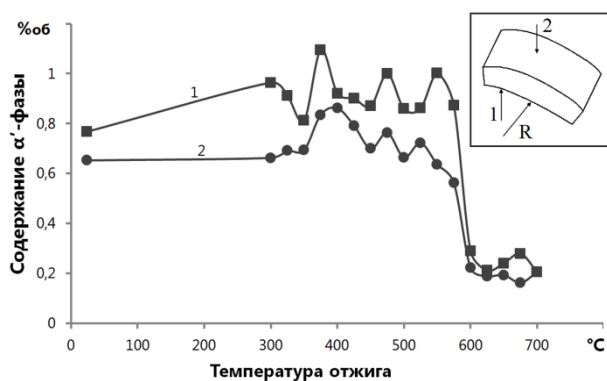
Из рисунка 2 следует, что при отжиге происходит уменьшение магнитной α' -фазы вследствие протекания обратного мартенситного $\alpha' \rightarrow \gamma$ -превращения. По достижению температуры 800°C α' -мартен-

сит в образцах не регистрируется. Следует обратить внимание, что на кривой отжига для образца, находившегося под пучком 780 минут, регистрируется некоторое увеличение содержания α' -фазы в районе температуры 400°C. В соответствии с данными механических испытаний в результате радиационного упрочнения образца № 67 действующее напряжение течения в нем достигали 100 кг/мм².

Нейтронное облучение I

Исследовали образец в виде пластины толщиной 2 мм (5×5 мм) стали 12Х18Н10Т, подвергнутой механико-термической обработке (15-20% ХД, отжиг 800°C 1 час), а затем облученной в реакторе БН-350 в составе чехла тепловыделяющей топливной сборки ЦЦ-19 (отметка «0» – центр активной зоны). Расчетная повреждающая доза составила 58 сна, температура облучения ~350°C. После облучения сборка длительное время находилась в воде бассейна-отстойника. Рентгеновскими и магнитными методами установлено, что вырезанный из стенки чехла (ближе к ребру) образец содержал небольшое количество ферромагнитной фазы (0,8% ферритных чисел, по данным феррозонда).

Пострадиационные отжижки этого (недеформированного) образца показали (рисунок 3), что активные процессы фазовых превращений в облученной стали происходят в районе температур 350-600°C. Причем вблизи температуры 400°C регистрируются локальные максимумы, фиксируемые на обеих сторонах пластины.



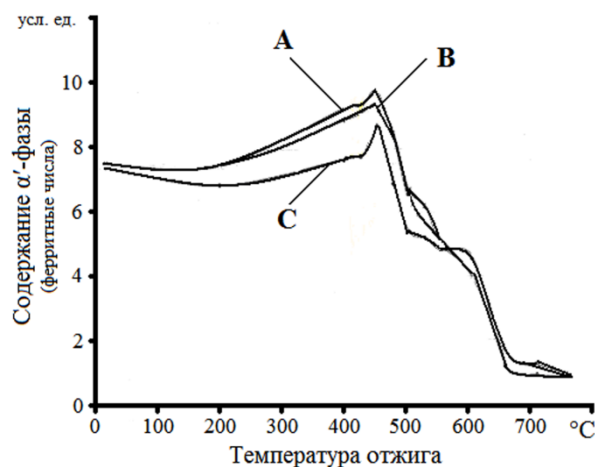
Место замера α' -фазы: 1 – внутренняя сторона пластины; 2 – внешняя сторона.

Рисунок 3. Изменение содержания α' -фазы при отжиге образца нержавеющей стали 12Х18Н10Т после высокодозного нейтронного облучения

Нейтронное облучение 2

Отжигали образец, облученный до 55,7 сна при 330°C в реакторе БН-350, предварительно деформированный до разрушения при комнатной температуре. (При испытании этого образца была обнаружена аномально высокая пластичность [18]). После каждого отжига регистрировали содержание α' -фазы в разных точках деформированного образца: А – ме-

сто разрыва, С – точка, отстоящая на расстоянии 2 мм от места разрыва, В – промежуточная точка. Результаты изохронных (30 мин) отжигов приведены на рисунке 4.



Место замера α' -фазы: А – место разрушения, В – точка, отстоящая на 5 мм от места разрыва, С – точка, отстоящая на 7 мм от места разрыва.

Рисунок 4. Влияние температуры отжига на количество ферромагнитной фазы в различных участках деформированного образца

Из рисунка 4 видно, что в районе температур отжига 400-450°C количество ферромагнитной фазы увеличивается и достигает максимума. При дальнейшем нагреве наблюдается немонокотное уменьшение магнитных свойств облученной стали и выше температуры 700°C магнитная фаза не регистрируется.

Интересно отметить, что ранее при отжиге деформированных стальных образцов, также вырезанных из стенок чехлов отработавших ТВС реактора БН-350, но облученных до меньших повреждающих доз (12,3 и 13,2 сна), эффекта увеличения магнитной фазы не наблюдали [19].

ОБСУЖДЕНИЕ ПОЛУЧЕННЫХ РЕЗУЛЬТАТОВ

Анализ полученных результатов начнем с вопросов: «Почему ранее [20] при отжиге образцов стали 12Х18Н10Т, облученных в реакторе ВВР-К до максимального флюенса нейтронов $2 \cdot 10^{20}$ н/см², а затем деформированных при комнатной температуре, мы не наблюдали эффекта увеличения содержания ферромагнитной фазы?». Если ответ заключается в уровне повреждающей дозы, то почему отжиг деформированных образцов стали 08Х16Н1МЗ, предварительно облученных до повреждающей дозы 15,6 сна, не обнаружил исследуемого эффекта, тогда как отжижки деформированных образцов той же стали, облученных до 0,25 и 11,9 сна, показали явные приросты содержания ферромагнитной фазы в районе температуры отжига ~400-450°C (рисунки 2-5)? Если по аналогии с [5] предположить, что увеличение M_f связано с тем, что в процессе отжига релаксируют напряжения сжатия, которые ранее «меша-

ли» образованию в γ -решетке более рыхлой α' -фазы, то следует ожидать, что чем больше будет исходная величина этих «снимаемых» отжигом напряжений, то тем больше будет эффект увеличения M_f . В свою очередь величина сжимающих напряжений будет зависеть от напряженного состояния в шейке – чем больше будет абсолютное значение сжимающих напряжений, тем большая часть этих напряжений может релаксировать. Таким образом многое зависит от уровня внутренних напряжений, нарастающих в процессе растяжения от начала образования стационарной шейки $(\sigma_B)_{ист}$ до момента разрыва образца

$(\sigma_p)_{ист}$. При этом точнее говорить об относительном приросте напряжений, т.е. о величине:

$$K_H = \frac{\sigma_p - \sigma_B}{\sigma_p}$$

Привлекая для расчетов экспериментальные диаграммы растяжения и найденные значения истинных напряжений течений для реакторных сталей 12X18H10T и 08X16H11M3, получаем следующие данные (таблица 1).

Таблица 1. Наличие эффекта роста M_f при отжиге облученных деформированных сталей в зависимости от величины напряжений

Сталь	08X16H11M3			12X18H10T			
Повреждающая доза	0,25 сна	11,9 сна	15,6 сна	0, 1150°C, 1ч	0,01 ВВР-К	12,28 сна	55,7 сна
Отметка, $T_{обл}$, паспорт образца	H-214(II), -1200, 280°C, № 50/4/3	B-337, -500, 305°C, № 52/4/1	H-214(I), 0, 337°C	$\leq 80^\circ\text{C}$	$\leq 80^\circ\text{C}$	H-214(I), 0, 363°C	ЦЦ-19, -160, 330°C, № 69/2/1
$\sigma_{B_{ист}}$, МПа	786	1140	1190	1100	1200	1130	1070
$\sigma_{p_{ист}}$, МПа	1470	2200	1910	1514	1567	1640	1681
$K_H = \frac{\sigma_p - \sigma_B}{\sigma_p}$, %	91	93	73	27	30	45	57
$\sigma_{p_{ист}} - \sigma_{B_{ист}}$	716	1060	870	300	367	510	610
Наличие эффекта	есть	есть	нет	нет	нет	нет	есть

Из таблицы 1 следует, что эффект прироста M_f при отжиге облученных деформированных стальных образцов наблюдается в случаях, если значение коэффициента интенсивности напряжений K_H больше, чем 57% стали 12X18H10T и больше, чем 91% для более стабильной стали 08X16H11M3.

Таким образом, основной причиной проявления эффекта роста M_f при отжиге, вероятнее всего, является релаксация (снятие) внутренних напряжений сжатия. Некоторой аналогией этого эффекта можно рассматривать явление образования «упругого мартенсита», когда при снятии внешних напряжений в предварительно деформированной стали 12X18H10T фиксируется увеличение содержания ферромагнитной α' -фазы [21]. Однако в некоторых случаях исследуемый эффект увеличения M_f при отжиге наблюдался нами в облученных материалах без предварительной деформации. Можно предположить, что в этом случае причиной образования высоких внутренних напряжений являются градиенты температуры и нейтронного потока, вследствие чего наблюдали различие дефектной структуры по толщине и по длине материалов ТВС [22]. На рисунке 3, где представлены результаты отжига высокооблученного (58 сна) образца стали, обращает на себя внимание, что эффекты роста M_f сильнее проявляются на внутренней стороне стенки шестигранного чехла, чем на внешней. Если принять во внима-

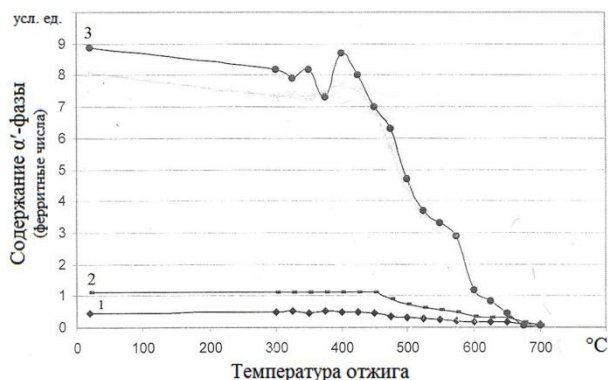
ние тот факт, что после вырезки образца он выгибался вовне, то тогда поверхностный слой материала с внутренней стороны образца оказывался сжатым и в процессе отжига именно здесь больше релаксируют напряжения сжатия, что и приводит к наблюдаемому эффекту увеличения M_f .

Не исключено также, что важную роль в формировании эффекта увеличения намагниченности играет тот факт, что при температурах, близких к 400°C, отжигается ϵ -мартенсит. Как известно, его образование в решетке аустенита приводит к увеличению объема на 17% и стало быть способствует возникновению упругих напряжений сжатия, которое препятствует образованию α' -мартенсита. Релаксация этих напряжений при отжиге и приводит к эффекту роста M_f . Некоторым дополнительным подтверждением высказанной гипотезы явились результаты экспериментов на сжатие.

Не исключено также, что важную роль в формировании эффекта увеличения намагниченности играет тот факт, что при температурах, близких к 400°C, отжигается ϵ -мартенсит. Как известно, его образование в решетке аустенита приводит к увеличению объема на 17% и стало быть способствует возникновению упругих напряжений сжатия, которое препятствует образованию α' -мартенсита. Релаксация этих напряжений при отжиге и приводит к эффекту роста M_f . Некоторым дополнительным под-

тверждением высказанной гипотезы явились результаты экспериментов на сжатие.

В этой серии экспериментов отжигали цилиндрические ($\varnothing 6$, $h=7$ мм) стальные образцы, которые предварительно сжимали при комнатной температуре, прикладывая различные нагрузки от 1,5 до 7,3 тонн. Некоторые результаты представлены на рисунке 5.



Приложенные нагрузки: 1 – 1,5т; 2 – 2,4т; 3 – 7,3т.

Рисунок 5. Температурные изменения содержания ферромагнитной фазы в образце стали 12Х18Н10Т после сжатия

Из рисунка 5 следует, что нагрев деформированного образца вплоть до температуры 350°C приводит к снижению содержания ферромагнитной фазы M_f . В то же время при более высоких температурах отжига намагниченность стали возрастает и при температуре 400°C проявляется локальный максимум M_f . Последующие отжики при более высоких температурах привели к практически полному исчезновению магнитной фазы в стали при температуре 700°C.

Другие важные вопросы, на которые следует ответить: «Почему эффект увеличения M_f при отжиге имеет место в области температур 400-450°C как в холоднодеформированных, так и в высокооблученных образцах? Какие физические процессы активизируются по достижении этих температур?». В этой связи уместно вспомнить результаты, приведенные в работе [15], по исследованию хромоникелевых сталей типа 18-9, 18-12, 18-17, облученных быстрыми нейтронами в реакторе БР-2 при температурах облучения 40-70°C средней интегральной дозой $1,8 \cdot 10^{20}$ н/см². Установлено, что вблизи температуры отжига 400°C имеет место начало отжига прироста микротвердости всех облученных сталей, которое заканчивается полным снятием эффекта радиационного упрочнения при температуре ~700°C. Согласно результатам анализа структурных изменений в облученных материалах, выполненных в работе [16] в районе 400°C начинают отжигаться дислокационная сетка, дефектные петли и поры – радиационные дефекты, вносящие основной вклад в упрочнение (рисунок 6).

Подытожить ответы на поставленные ранее вопросы можно следующим образом. Сильная локали-

зованная холодная деформация или облучение до высоких повреждающих доз приводят к созданию в кристаллической решетке стали дефектов и связанных с ними значительных внутренних напряжений. К такому же результату приводит увеличение удельного объема в процессе $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращения. Если возникающие в некоторых объемах материала напряжения сжатия действуют на аустенитную матрицу, то образование и развитие преципитата мартенсита в них заторможено. Снятие этих напряжений (любым образом – за счет повышения температуры или снятия внешней нагрузки) может привести к росту зародышей α' -мартенсита, возникших ранее за счет автокаталитического зарождения, или к образованию новых зародышей. Это приводит к частичному превращению, сохранившегося после внешнего воздействия, аустенита в α' -мартенсит, т.е. к росту M_f .

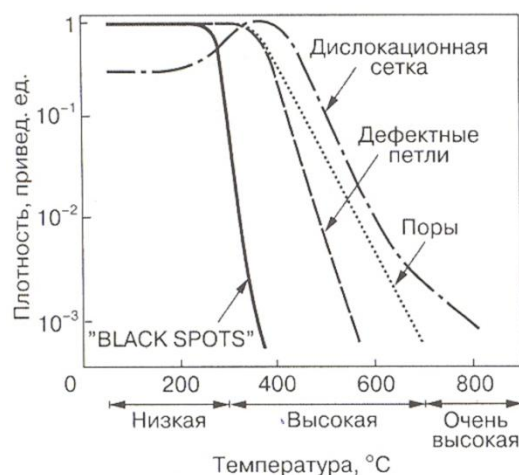


Рисунок 6. Температурная зависимость экспериментально наблюдаемой плотности «насыщения» различных микроструктурных компонент в аустенитных нержавеющих сталях, облученных нейтронами

Принимая во внимание результаты работ [12,23] можно предположить, что в нашем случае в нержавеющей стали 12Х18Н10Т при температурах отжига 400-450°C происходит миграция атомов никеля и хрома, что приводит к расслоению твердого раствора с образованием концентрационных неоднородностей. Скорость перемещения атомов Ni, Cr возрастает с увеличением дефектности решетки. Процесс перераспределения атомов сопровождается изменением внутренних напряжений. Причем на ранних стадиях старения, когда образуются предвыделения вторичных фаз ($Cr_{23}C_6$), напряжения могут сначала нарастать, а затем после обособления карбидных частиц напряжения релаксируют. В том числе уменьшаются и напряжения сжатия, что приводит к увеличению количества α' -фазы и, как следствие, к росту намагниченности стальных образцов при отжиге.

ЛИТЕРАТУРА

1. Мартенситные превращения : тез. докл. конф., ICOMAT-77. – Киев : 1977. – 300 с.
2. Максимкин, О.П. Электронно-микроскопическое изучение мартенситных превращений в облученной электронами стали 12X18H10T / Х.Г. Кадыров, К.В. Цай, Н.В. Щербинина // Изв. НАН РК. Сер. физ.-мат. – 2003. – № 6. – С. 9-13.
3. Малышев, К.А. Фазовый наклеп аустенитных сплавов на железоникелевой основе / В.В. Сагарадзе, И.П. Сорокин – М : Наука, 1982. – 260 с.
4. Чухлеб, А.И. Фазовые превращения $\gamma \leftrightarrow \alpha'$ при старении в сталях типа 18-8, предварительно деформированных при отрицательной температуре / В.П. Мартынов // ФММ – 1960. – Т. 10, № 2. – С. 240–244.
5. Mangonon, L. Structure and Properties of Thermal-Mechanically treated 304 Stainless Steel / G. Thomas // Metallurgical Transaction. – 1970. – Vol. 1. – P. 1587–1594.
6. Рожкова, С.Б. Механические свойства аустенитных сталей после низкотемпературной деформации и отпуска / А.Л. Осинцева // МиТОМ – 1975. – № 2. – С. 63–66.
7. Неклюдов, И.М. О некоторых возможных путях влияния на фазовый состав, структуру и свойства аустенитных сталей / В.М. Нетесов // ВАНТ. Сер. Физика радиационных повреждений. – 2005. – № 5. – С. 164–167.
8. Нетесов, В.М. Влияние $\alpha' \rightarrow \gamma$ -превращения на электрическое сопротивление и структуру стали X18H10T / А.А. Яес // Металлы. – 1987. – № 3. – С. 104–106
9. Stout, R.K. Heat effect upon annealing plastically deformed 304 L Stainless steel / C.R. Thomas // Scripta Metallurgica. – 1976. – Vol. 10. – P. 741–746.
10. Лариков, Л.И. Образование и залечивание микротрещин при деформации и отжиге аустенитной стали / П.В. Мудрук, Ю.Ф. Юрченко // Металлофизика. – 1989. – Т. 11, № 5. – С. 71–75.
11. Лурье, С.А. Структура и фазовые превращения в холоднодеформированной стали Fe-18Cr-9Ni / Н.Н. Потапова, Е.А. Демин // Металловедение и термообработка. – 1978. – № 6. – С. 8–12.
12. Жубаев А.К. Исследование пластической деформации нержавеющей стали методом мессбауэровской спектроскопии и рентгеноструктурного анализа // Сборник : тез. докл. конф., НИОКР молодых ученых и специалистов НЯЦ РК. – Алматы : 13-15 мая 2002. – С. 231-244.
13. Porter, D. In-reactor precipitation and ferrite transformation in neutron-irradiation stainless steel / E. Wool // J. Nucl. Mater. – 1979. – Vol. 83. – P. 90–97.
14. Чукалкин, Ю.Г. Магнитные свойства стали X16H15M3Б, облученной до высокого флюенса быстрых нейтронов / Ю.Г. Чукалкин [и др.]. // Атомная энергия. – 1988. – Т. 65, № 4. – С. 254–257.
15. Ибрагимов, Ш.Ш. Исследование свойств и структуры металлов и некоторых сталей после облучения их быстрыми нейтронами / В.С. Ляшенко, А.И. Завьялов // Атомная энергия. – 1960. – Т. 8, № 5. – С. 413–419.
16. Maziasz, P.S. // International Materials Review. – 1987. – Vol. 32, №4. – P. 190.
17. Воронин, И.М. Ферромагнитные свойства аустенитных хромоникелевых сталей и сплавов, облученных до высоких флюенсов / С.И. Поролло // Атомная энергия. – 1989. – Т. 66, № 1. – С. 33–37.
18. Maksimkin, O.P. Anomalous large deformation of 12Cr18Ni10Ti austenitic steel irradiated to 5 to 55 dpa at 310°C in the BN-350 reactor / M. N. Gusev, I. S. Osipov, F. A. Garner // J. Nucl. Mater. – 2009. – P. 273–276.
19. Максимкин, О.П. Мартенситные превращения при деформации и отжиге нержавеющей сталей 12X18H10T и 08X16H11M3, облученных в реакторе БН-350 / О.П. Максимкин [и др.]. // Известия НАН РК. – 2005. – № 5. – С. 145–152.
20. Максимкин, О.П. Влияние температуры деформации и отжига на мартенситное превращение / Д.Х. Садвакасов // ФММ – 1992. – № 5. – С. 136–139.
21. Максимкин, О.П. Магнитометрическое исследование особенностей мартенситного $\alpha' \rightarrow \gamma$ превращения в облученной нейтронами стали 12X18H10T / К.В. Цай // Металлы. – 2008. – № 5. – С. 39–47.
22. Максимкин, О.П. Различие структуры и свойств поверхностей шестигранного чехла отработавших ТВС реактора БН-350 / О.В. Тиванова, Л.Г. Турубарова // ВАНТ. Сер. Физика радиационных повреждений. – 2007. – № 2. – С. 142–149.
23. Гойхенберг, Ю.Н. Превращение мартенсита деформации в аустенит в нержавеющей сталях при различных скоростях нагрева / М.М. Штейнберг // ФММ – 1978. – № 11. – С. 1253–1262.

БН-350 ШАПШАҢ РЕАКТОРЫНДА ЖОҒАРЫ БҮЛДІРЕТІН ДОЗАҒА ДЕЙІН СӘУЛЕЛЕНДІРІЛГЕН 12X18H10T БОЛАТТАҒЫ КЕРІ МАРТЕНСИТТІК $\alpha' \rightarrow \gamma$ -ТҮРЛЕНУДІҢ КЕЙБІР ЕРЕКШЕЛІКТЕРІ

¹⁾Максимкин О.П., ¹⁾Мережко М.С., ¹⁾Рубан С.В., ²⁾Рахашев Б.К.

¹⁾ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан

²⁾Академиялық инновациялық университет, Шымкент, Қазақстан

Нейтрондармен (56 сна) және α -бөлшектермен сәулеленген деформацияланған 12X18H10T болат үлгілерді күйдіру барысында 4000С аймағында ферромагниттік фаза мөлшерінің қосымша өсуі эффектiсi айқындалды. Сол сияқты эффект 58 сна мөлшеріне дейін сәулеленген 12X18H10T болатта қосымша деформациясыз-ақ байқалды.

**CERTAIN SINGULARITIES OF REVERSE MARTENSITIC $\alpha' \rightarrow \gamma$ -TRANSFORMATION
IN 12CR18N10TI AFTER HIGH-DOSE IRRADIATION IN BN-350 FAST NEUTRON REACTOR**

¹O.P. Maksimkin, ¹M.S. Merezko, ¹S.V. Ruban, ²B.K. Rahashev

¹*Institute of nuclear physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan*

²*Academic innovative university, Shymkent, Kazakhstan*

Effect of additional content of martensitic phase increase in irradiated by neutrons (56 dpa) and α -particles ($\sim 10^{18}$ part/sm²), deformed 12Cr18Ni10Ti stainless steel during annealing near 400°C was discovered. Similar effect was observed during annealing of 12Cr18Ni10Ti stainless steel after irradiation to damage doses of 58 dpa without any deformation.

УДК 621.039.531:669

МАРТЕНСИТНОЕ $\gamma \rightarrow \alpha'$ -ПРЕВРАЩЕНИЕ ПРИ РАСТЯЖЕНИИ СТАЛЬНОГО ОБРАЗЦА С КРУГОВЫМ КОНЦЕНТРАТОРОМ НАПРЯЖЕНИЯ

¹⁾Максимкин О.П., ¹⁾Пазылбек С.А., ²⁾Бактибаев А.Н.

¹⁾Институт ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

²⁾Международный казахско-турецкий университет им. Х.А. Ясави, Туркестан, Казахстан

Проведены механические испытания образцов стали 12Х18Н10Т с концентратором напряжений в виде кругового отверстия. Установлены закономерности образования мартенситной α' -фазы на различных стадиях растяжения в различных точках деформируемого стального образца.

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что широко используемые в реакторостроении нержавеющие аустенитные хромоникелевые стали типа 18-10 являются метастабильными и внешнее интенсивное воздействие вызывает протекание в них фазово-структурных $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращений мартенситного (бездиффузионного) типа. В результате в стальной парамагнитной γ -матрице (ГЦК-решетка) образуется и по мере деформации накапливается ферромагнитная α' -фаза (ОЦК-решетка).

К настоящему времени $\gamma \rightarrow \alpha'$ -переход достаточно хорошо изучен [1, 2], в том числе и для облученных материалов. Так, некоторые особенности $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращения в стали 12Х18Н10Т, облученной нейтронами, импульсными электронами или имплантированной гелием на циклотроне описаны в работах [3-5]. В то же время, из обзора литературы следует, что мало внимания уделяется изучению случаев образования α' -фазы в стальных образцах с концентраторами напряжений как микро-, так и макроразмеров. Между тем, рассмотрение именно этих примеров представляет практический интерес, поскольку в реальных случаях материал бывает, как правило, неоднороден, что при механических и радиационных воздействиях приводит к образованию различных типов концентраторов напряжений, служащих местами предпочтительного зарождения вторичной фазы. Например, хорошо известно, что в нержавеющих сталях, облученных нейтронами до высоких повреждающих доз при повышенных температурах, как правило, регистрируются поры. Теоритически показано [6], что в случае появления в поле растягивающих напряжений на расстоянии λ двух сфер диаметром D , на ближних поверхностях этих сфер возникает концентрация напряжений (зависящая от D/λ), что на практике облегчает зарождение микротрещин на порах и приводит к снижению механических характеристик высокооблученных сталей – так называемый эффект среднетемпературного охрупчивания [7].

Цель настоящей работы, в которой роль концентратора напряжений выполняет круговое отверстие в плоском образце реакторной стали 12Х18Н10Т – установить закономерности образования индуцированной деформацией мартенситной α' -фазы на раз-

личных этапах растяжения и разрушения, определить локальные деформации и величины коэффициента концентрации напряжений.

ОБРАЗЕЦ И МЕТОДИКА ЭКСПЕРИМЕНТА

В качестве образца для исследований была взята пластина толщиной 1 мм изготовленная из нержавеющей промышленной стали 12Х18Н10Т. Форма и размеры образца показаны на рисунке 1.

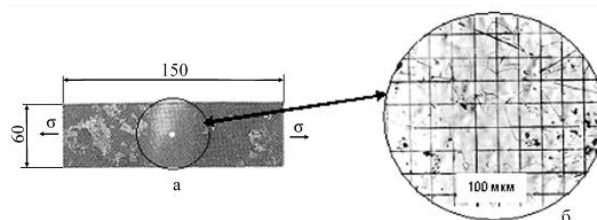


Рисунок 1. а) Форма и размеры исследуемого образца стали 12Х18Н10Т. Толщина пластины 1 мм, диаметр отверстия 6 мм; б) Участок поверхности образца с нанесенной на нее сеткой рисок

В средней части образца методом механической полировки был изготовлен шлиф размером 60х60 мм, который был расчерчен на квадратики размером 5х5 мм. В центре координатной сетки по оси образца было высверлено сквозное отверстие диаметром $D=6$ мм. Образец был нагрет до 1000°C, выдержан при этой температуре в течение часа, а затем охлажден в воду. Механические испытания на растяжение со скоростью 0,4 мм/мин проводили при комнатной температуре на разрывной машине ZD-10 с периодическими остановками через каждые 5 мин для того, чтобы с помощью феррозонда Ферстера Ф1.053 провести измерения содержания ферромагнитной мартенситной α' -фазы в каждой узловой точке расчерченного участка (в ферритных числах показаний феррозонда). Одновременно фотографировали координатную сетку, определяя величину локальных деформаций.

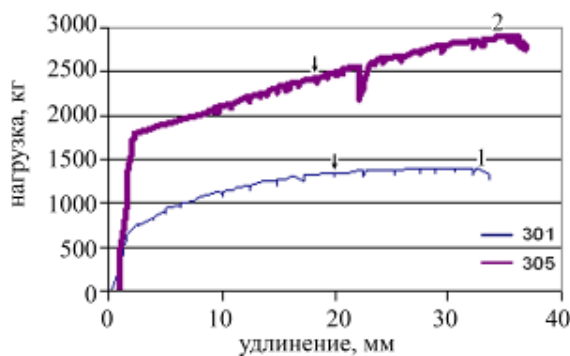
$$\delta_{\text{лок}} = \frac{l_k - l_0}{l_0},$$

где l_0 – длина ячейки до растяжения; l_k – длина ячейки после растяжения.

Наряду с тем были проведены механические испытания стального образца без концентратора напряжений с размерами $20 \times 80 \times 1$ мм.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

На рисунке 2 приведены инженерные диаграммы растяжения стальных образцов без концентратора (№301) и с круговым концентратором напряжений (№ 305).



Тип образца: 1 – без концентратора;
2 – с круговым концентратором напряжений.

Рисунок 2. Машинные диаграммы растяжения образцов стали 12X18H10T. Стрелками отмечены моменты образования в пробах мартенситной α' -фазы, индуцированной деформацией

Магнитные измерения показали, что в процессе растяжения на определенном этапе образуется ферромагнитная α' -фаза, количество которой непрерывно увеличивается по мере роста удлинения. Однако, если в первые моменты деформации ее распределение по деформируемому образцу равномерно, то в последующем, когда образуется шейка, это распределение становится неоднородным, с явным преобладанием количества α' -фазы в месте локализованной деформации (рисунок 3). К концу растяжения образца регистрируется некоторое финишное распределение локальных деформаций и соответствующих им значений ферромагнитной α' -фазы, которые, как правило, коррелируют друг с другом (рисунок 4). На рисунке 5 показано, как изменяются в процессе пластической деформации координатная сетка и форма кругового отверстия, а из рисунка 6 видно как распределяется ферромагнитная α' -фаза в образце, деформированном до разрушения. Если соединить точки с одинаковым содержанием α' -фазы, то вырисовываются определенные «эквотенциальные» области, симметричные относительно оси растяжения.

Есть все основания полагать, что количество индуцированной деформацией α' -фазы коррелирует с напряженным состоянием или с уровнем локализованных деформаций в каждой узловой точке координатной сетки, как это видно из рисунка 4.

Очевидно, что после того, как средний уровень деформаций (напряжений) в деформируемом образ-

це достигнет критических значений, соответствующих зарождению α' -фазы ($\sigma_{кр} \approx 60-65$ кг/мм²), в аустенитной матрице начнется $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение. Зная величину $\sigma_{кр}$ для стали 12X18H10T, подвергнутой одноосному холодному растяжению, а также экспериментально определяя критическое напряжение начала $\gamma \rightarrow \alpha'$ перехода $\sigma_{кр}^k$ для стального образца с концентратором напряжения в виде кругового отверстия, можно найти значения концентратора напряжения K из соотношения: $\sigma_{кр}^k = K \cdot \sigma_{кр}$ (σ – «истинные» напряжения). Номинальное напряжение $\sigma_{кр}$ обычно вычисляют по формуле:

$$\sigma_{кр} = \frac{P_{кр}}{S},$$

где $P_{кр}$ – прилагаемая нагрузка, S – площадь поперечного сечения или площадь сечения, ослабленного концентратором. Напряжения $\sigma_{кр}^k$ на контуре концентратора могут превысить предел текучести материала, что приводит к появлению областей пластических деформаций. Наличие таких областей вызывает перераспределение действующих напряжений и изменение коэффициента концентрации напряжений.

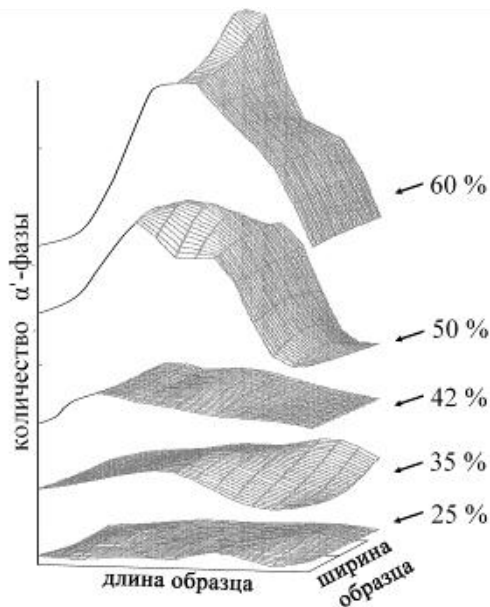


Рисунок 3. Распределение ферромагнитной α' -фазы по деформированному образцу стали 12X18H10T (№ 301), цифры у рисунков – относительное удлинение в %

Данные, полученные по растяжению образца без концентратора напряжения (№ 301, характеризующегося пределом текучести $\sigma_t = 22$ кг/мм², свидетельствуют о том, что $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение, индуцированное деформацией, начинается в нем по достижению критического напряжения $\sigma_{кр} = 65$ кг/мм² или, другими словами по достижению разности напряжений $\sigma_{кр} - \sigma_t = \Delta\sigma = 43$ кг/мм².

**МАРТЕНСИТНОЕ $\alpha' \rightarrow \gamma$ -ПРЕВРАЩЕНИЕ ПРИ РАСТЯЖЕНИИ
СТАЛЬНОГО ОБРАЗЦА С КРУГОВЫМ КОНЦЕНТРАТОРОМ НАПРЯЖЕНИЯ**

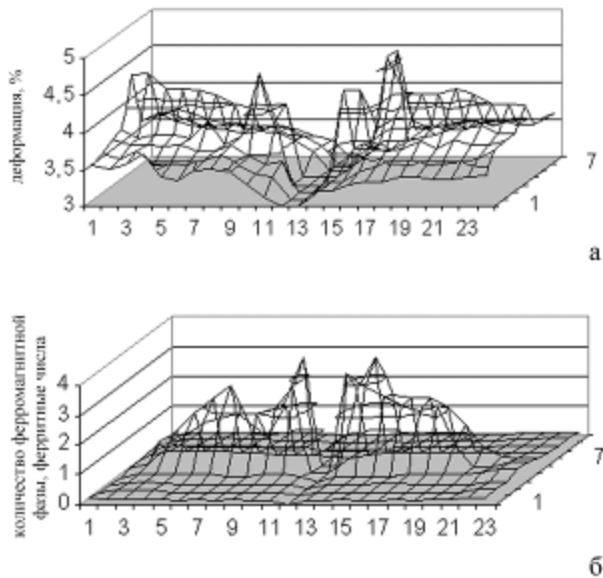


Рисунок 4. Распределение локальных деформаций (а) и ферромагнитной мартенситной α' -фазы (б) по образцу стали 12Х18Н10Т с концентратором напряжений

Если бы мы деформировали образцы без концентратора напряжений № 302 и № 303, то зарождение α' -фазы в образце № 302 (с пределом текучести $\sigma_T = 1830 \text{ кг/60 мм}^2 = 30,5 \text{ кг/мм}^2$) случилось бы при напряжении $\sigma_{кр} = 30,5 + 43 = 73,5 \text{ кг/мм}^2$. Аналогично для образца № 303 (с пределом текучести $\sigma_T = 1968/60 = 33 \text{ кг/мм}^2$) – при напряжении $\sigma_{кр} = 33 + 43 = 76 \text{ кг/мм}^2$. Однако, экспериментально были зарегистрированы другие значения критического напряжения, при котором уже наблюдалось $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение, а именно, для образца № 302 ($\sigma_{кр \gamma \rightarrow \alpha'} = 2460/60 = 41 \text{ кг/мм}^2$), а для образца № 303 $\sigma_{кр \gamma \rightarrow \alpha'} = 2720/60 = 45 \text{ кг/мм}^2$. Как видно, из сравнения значения (41 кг/мм^2 и 45 кг/мм^2) существенно меньше, чем вычисленные $73,5 \text{ кг/мм}^2$ и 76 кг/мм^2 и это различие связано с тем, что действительные напряжения отличаются от номинальных, а для их сопоставления необходимо ввести коэффициент напряжений К, который для образца № 302 составляет $73,5/41 = 1,78$, тогда как для образца № 303 $K = 76/45 = 1,68$.

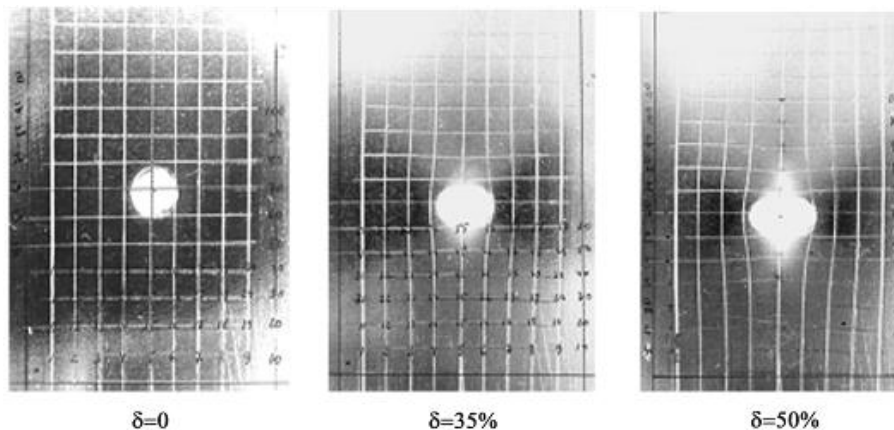


Рисунок 5. Изображение координатной сетки на различных этапах растяжения стального образца с концентратором напряжения в виде отверстия

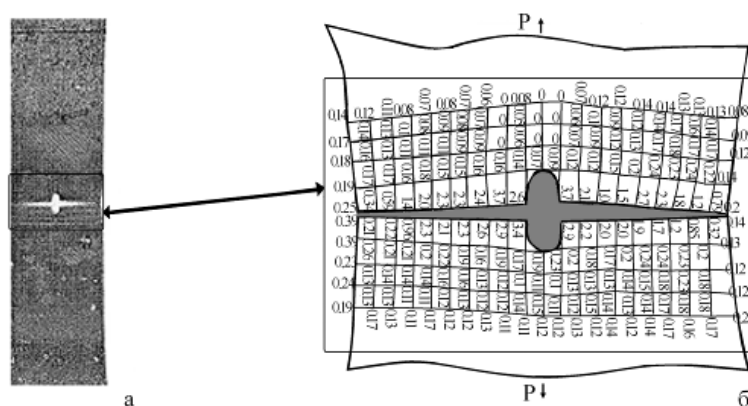


Рисунок 6. Разрушенный стальной образец (а), распределение ферромагнитной α' -фазы по образцу (б)

Согласно теории упругости [8] для образца в виде пластины шириной $2b=60$ мм и с круговым концентратором напряжения $2a=5$ мм выражение для среднего напряжения в точках пластины, прилегающих к центральному круговому отверстию по оси М-Н (рисунок 7), даётся уравнением:

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{3}(\sigma_p - \sigma_\theta) = \frac{\bar{\sigma}_u}{2} \left[\frac{b^2}{b^2 - a^2} \left(1 - \frac{a^2}{R^2} \right) + 5 \frac{a^2}{R^2} + 1 \right],$$

где R – расстояние от центра кругового отверстия до исследуемой точки пластины. Расчет $\bar{\sigma}$ для точки $R_1=5,5=2,2a$ дает следующие результаты: $K=1,42$; для точки $R_2=a$ – $K=3,01$. Т.е. между точками R_1 и R_2 есть промежуточная точка R_x , в которой $K \approx 1,7$ – величина, очень близкая к полученным экспериментально значениям 1,78 или 1,68.

Принимая во внимание тот факт, что объем, занимаемый индуцируемой деформацией α' -фазой больше, чем исходной аустенитной γ -фазы, следует ожидать, что под действием напряжений растяжения ее количество будет больше, чем при таком же уровне сжимающих напряжений.

Таким образом, анализируя области равных количеств α' -фазы (их расположение в образце и уровень абсолютных значений), можно прийти к выводу о распределении напряжений и их знаке в деформируемом образце с концентратором напряжений (рисунок 7). Из этой схемы видно, что во время растяжения образца с отверстием по линии AB возникают напряжения растяжения, тогда как по линии CD – напряжения сжатия. Причем, растягивающие напряжения примерно в 3 раза больше, чем сжимающие напряжения.

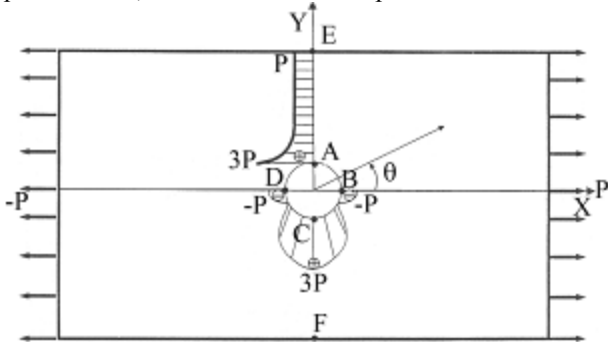


Рисунок 7. Эпюры напряжений в деформируемом образце с круговым концентратором напряжений [9]

На рисунке 8а представлены экспериментальные кривые зависимости количества ферромагнитной фазы в различных узловых точках от времени растяжения. Из рисунка 8б следует, что интенсивность образования и накопления α' -фазы максимальна в точках 3 и 4. Как правило, во всех точках, симметричных относительно оси растяжения образца, количество α' -фазы было одинаковым, однако, в некоторых случаях наблюдали отклонения от этой закономерности. Например, на рисунке 8а обращает на себя внимание тот факт, что в точке 8 количество α' -

фазы меньше, чем в симметричной точке 9. Вероятнее всего, это связано с тем, что в момент растяжения $t=42,5$ мин в образце вблизи концентратора со стороны точки 8 образовалась микротрещина, с появлением которой связана релаксация напряжений.

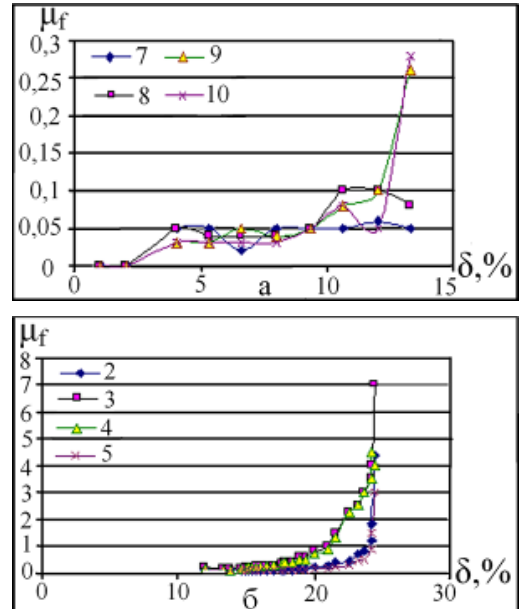


Рисунок 8. Кинетические кривые накопления ферромагнитной α' -фазы в точках, близко расположенных к концентратору напряжения (а); изменение мартенситной α' -фазы в других точках в процессе растяжения (б)

Установлено, что, если прервать процесс растяжения и убрать деформирующее напряжение, то значения ферромагнитной фазы во всех исследуемых точках возрастут на величину $\Delta\mu$. На рисунке 9 приведена временная зависимость разности показаний феррозонда без нагрузки и под нагрузкой в точках 3 и 4, расположенных вблизи кругового отверстия. Из рисунка видно, что до 87 минуты растяжения разность $\Delta\mu$ увеличивается, но затем уменьшается и даже изменяет знак на 92-й минуте растяжения.

Этот эффект «упругого мартенситообразования» подробно описан нами в работе [10] и связан, в основном, с изменениями значений и знака внутренних напряжений. Очевидно, что образование микротрещин в деформируемом стальном образце обусловлено релаксацией внутренних напряжений, что приводит к уменьшению $\Delta\mu$ на заключительном этапе растяжения.

Рассмотрим процесс образования и развития микротрещин более подробно. На рисунке 10 приведена картина распределения ферромагнитной α' -фазы, сложившаяся к 91-й и 92-й минутам растяжения образца №305. К этим моментам растяжения удлинение образца достигло значений 36,4 мм и 36,8 мм, соответственно, а вблизи концентратора напряжения образовалась (91-я минута) и развивалась (92-я минута) микротрещина, на кпаях которой значения μ_f слева и справа от отверстия оказались равны, соответственно, 5 и 8,6% (ферритные числа).

**МАРТЕНСИТНОЕ $\alpha' \rightarrow \gamma$ -ПРЕВРАЩЕНИЕ ПРИ РАСТЯЖЕНИИ
СТАЛЬНОГО ОБРАЗЦА С КРУГОВЫМ КОНЦЕНТРАТОРОМ НАПРЯЖЕНИЯ**

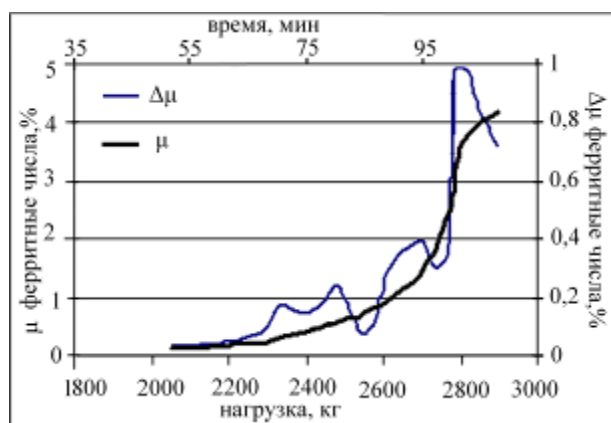


Рисунок 9. Изменение в процессе растяжения количества α' -фазы (μ) и разности её значений ($\Delta\mu$) в нагруженном и разгруженном состояниях

Ближе к краям образца (вдоль рассматриваемой оси) количество α' -фазы значительно меньше. Остановка растяжения и разгрузка образца привели к тому, что был зарегистрирован эффект «упругого мартенситообразования», характеризующийся определенными значениями α' -фазы, которые приведены в таблице 1.

Из таблицы 1 следует, что снятие нагрузки сразу после образования микротрещины привело к повышению уровня фиксируемого количества ферромагнитной фазы во всех точках, за исключением 4-й, в которой в этот момент растяжения наблюдали видимую микротрещину. Обращает на себя внимание тот

факт, что магнитная характеристика $\Delta\mu_i = \mu_i^{\beta..H} - \mu_i^H$ стала уменьшаться раньше, чем трещина была обнаружена визуально. Таким образом, периодически измеряя значения мартенситной фазы под нагрузкой и без нагрузки в деформируемом образце и определяя разность этих величин, можно судить о моменте начала образования скрытой, невидимой микротрещины, предшествующей разрушению: если $\Delta\mu > 0$, микроразрушение не состоялось; если $\Delta\mu = 0$, то в этом месте зародилась микротрещина.

После проведения магнитных измерений в момент $t=91$ мин образец №305 был вновь нагружен до $P=2860$ кг, после чего трещина начала увеличиваться. При этом контроль содержания α' -фазы в точках А, В, С, D, Е, расположенных впереди движущейся трещины (рисунок 11), показал следующие значения (после разгрузки): $A=3,8$; $B=1,1$; $C=0,22$; $D=0,1$; $E=0$. В то же время в этих же точках до разрушения было: $A=1,7$; $B=0,6$; $C=0,25$; $D=0,2$; $E=0$ (в ферритных числах).

В момент времени $t=92$ мин измерения показали следующее: в точке А была трещина; в точке В находилось острие продвигающейся трещины, а значение ферромагнитной фазы равнялось 5; $C = 2,0$ (в этой точке образовалась ложбинка); $D = 1,15$; $E = 0,2$.

По завершению магнитных измерений образец разгрузили и вновь провели измерения содержания α' -фазы. Оказалось: в точке $B=6,0$; $C=1,7$; $D=0,7$; $E=0,3$. Т.е. в зонах II и III значения α' -фазы при разгрузке уменьшились, а в зоне IV возросли.

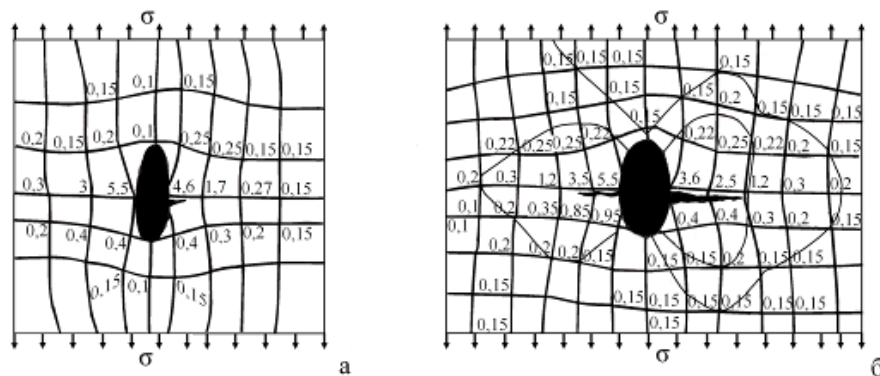


Рисунок 10. Распределение ферромагнитной α' -фазы и вид кругового концентратора к различным моментам растяжения: а) 91-я минута растяжения; б) 92-я минута растяжения.

Таблица 1. Значения ферромагнитной α' -фазы (в ферритных числах) под нагрузкой и без нагрузки в различное время растяжения после момента образования микротрещины

Время растяжения	Значения α' -фазы, % в точках 1-8	μ_1	μ_2	μ_3	μ_4	μ_5	μ_6	μ_7	μ_8
t=91 мин	под нагрузкой ($P=2900$ кг) кг, μ_i^H	0,2	1,8	4,0	4,5	1,5	0,2	0,12	0,12
	без нагрузки ($P=0$), $\mu_i^{\beta..H}$	0,32	2,3	5,5	4,3	2,0	0,3	0,18	0,18
t=92 мин	под нагрузкой ($P=2950$ кг) кг, μ_i^H	1,4	4,4	7,0	4,0	3,0	2,0	0,22	0,12
	без нагрузки ($P=0$), $\mu_i^{\beta..H}$	1,0	4,0	4,8	3,6	2,6	1,4	0,3	0,18

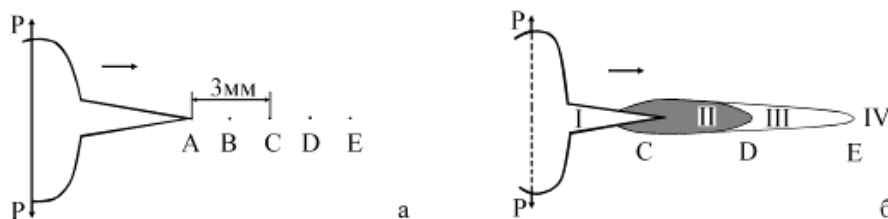


Рисунок 11. а) Продвижение и расширение трещины; б) Схематическое представление зон в материале, предшествующих трещине: I – трещина; II – пластически деформированная зона; III – частично деформированная зона; IV – упруго-деформированная зона

Таким образом, следует различать 3 зоны материала впереди продвигающейся микротрещины (рисунок 11б); II – ложбинка перед трещиной, свидетельствующая о сильной степени пластической деформации; III – частично деформированная зона; IV – упруго-деформированная зона материала. Содержание ферромагнитной фазы в этих областях при разгрузке изменится по-разному: в зоне I (на краях трещины) – остается такой же как и накануне разрыва; в зоне II – уменьшается; в зонах III и IV – возрастает.

Привлекая для анализа полученных результатов данные, описанные ранее в работе [11], можно прийти к выводу, что в непосредственной близости от вершины трещины уровень внутренних напряжений меньше, чем на расстоянии 2-3 мм, где образуется зона с повышенным уровнем внутренних напряжений, за счет которых трещина перемещается вперед.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены исследования мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения, протекающего при растяжении образца стали 12X18H10T с круговым концентратором напряжения.

Показана методическая возможность определения местонахождения и размеров микротрещин невидимых невооруженным глазом в метастабильных нержавеющих сталях, в которых возможно образование α' -фазы при деформации.

С использованием феррозонда Ферстера Ф1.053 получены распределения α' -фазы вблизи концентратора напряжений, анализ которых показал, что вокруг микротрещины присутствуют области, характеризующиеся сжимающими и растягивающими напряжениями, причем растягивающие напряжения располагаются в областях, примыкающих к краям трещины, а на периферии располагаются области, в которых преобладают сжимающие напряжения. Эти данные не противоречат результатам, опубликованным в открытой печати [12, 13].

ЛИТЕРАТУРА

1. Курдюмов, Г.В. Превращения в железе и стали / Г.В. Курдюмов, Л.М. Утевский, Э.Ч. Энтин – М. : Наука, 1977. – 277 с.
2. Петров, Ю.Н. Дефекты и бездиффузионное превращение в стали / Ю.Н. Петров – Киев. : Наукова думка, 1978. – 262 с.
3. Ибрагимов, Ш.Ш. Мартенситное $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращение и механические свойства стали 12X18H10T, облученной нейтронами / Ш.Ш. Ибрагимов, О.П. Максимкин, Д.Х. Садвакасова // ФММ. – 1991. – № 7. – С. 199–201.
4. Максимкин, О.П. Исследование мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращения в аустенитной нержавеющей хромоникелевой стали, имплантированной гелием / О.П. Максимкин, Цай К.В., Щербинина Н.В. // ВАНТ. Сер. : «Термоядерный синтез» – 2003. – № 2. – С. 73–79.
5. Maksimkin, O.P. Martensitic Transformations in Neutron Irradiated and Helium Implanted Stainless Steels / O.P. Maksimkin, K.K. Kadyrzhanov // Journal of ASTM, 21st International Symposium “Effects of Radiation on Materials”. – 2004. – Vol. 1, № 4. – P. 105–118
6. Цутида, Э. Концентрация напряжений в месте образования сферических дефектов / Э. Цутида // Нихон кикай таккай ромбунсю. – 1976. – Т. 79, № 693. – С. 789–794.
7. Неустроев, В.С. Влияние величины радиационного распухания на характеристики прочности аустенитной стали ОХ16Н15МЗБ / В.С. Неустроев [и др.] // Сб. научных трудов «радиационная порождаемость и работоспособность материалов ядерных энергетических установок». – 1990. – С. 29–32.
8. Савин, Г.Н. Распределение напряжений около отверстий / Г.Н. Савин – Киев. : Наукова думка, 1968. – 887 с.
9. Кожебаева, А.С. Конечноэлементное обобщение задачи Кириши для трансверсально-изотропной пластинки с отверстием / А.С. Кожебаева // Материалы республиканской научной конференции молодых ученых, студентов и школьников. «IY Сатпаевские чтения», т.11. Павлодар. – 2004. – С. 68–73.
10. Максимкин, О.П. Магнитометрические исследования особенностей мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращения в облученной нейтронами стали 12X18H10T / О.П. Максимкин, К.В. Цай // Металл. – 2008. – № 5. – С. 39–47.
11. Лой, К. Пластическая зона перед вершиной усталостной трещины в нержавеющей стали 316 / К. Лой, К. Базмас, Д. Ретолли // Материалы ASTM. – 1983. – № 811. – С. 1–26.
12. Бове, К.Х. Определение трещин в метастабильных аустенитных сплавах с помощью датчика проводимости / К.Х. Бове, Е. Хорнбоген, У. Беттгамп, // Materialpreif. – 1979. – Т. 21, № 3.

13. Доровский, В.М. Исследование кинетики зарождения и распространения трещин в образцах стали 0X16H15M3Б после отжига и последующего облучения / В.М. Доровский, Л.А. Елесин // Труды международной конференций по радиационному материаловедению, Харьков. – 1990. – Т. 7, – С. 150–166.

**КЕРНЕУІ ДӨҢГЕЛЕК КОНЦЕНТРАТОРЛЫ БОЛАТ
ҮЛГІНІ СОЗУ КЕЗІНДЕГІ МАРТЕНСИТТІК $\gamma \rightarrow \alpha'$ -АЙНАЛУ**

¹⁾Максимкин О.П., ²⁾Пазылбек С.А., ²⁾Бактибаев А.Н.

¹⁾*ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан*

²⁾*Х.А. Ясауи атындағы халықаралық қазақ-түрік университеті, Түркістан, Қазақстан*

Кернеу концентраторы дөңгелек саңылау түрдегі 12X18H10T болат үлгіге механикалық бақылау жүргізілді. Деформацияланған болат үлгінің әртүрлі нүктесінде созудың әртүрлі сатысындағы мартенситтік α' -фазаның пайда болу заңдылығы анықталды.

**MARTENSITIC $\gamma \rightarrow \alpha'$ -TRANSFORMATION AT TENSILE DEFORMATION
OF THE STEEL SAMPLE WITH A DISK-SHAPED STRESS CONCENTRATOR**

¹⁾O.P. Maksimkin, ²⁾S.A. Pazylbeck, ²⁾A.N. Baktybayev

¹⁾*Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan*

²⁾*International Kazakh-Turkish University by H.A. Yasawi, Turkestan, Kazakhstan*

The mechanical tests of 12Cr18Ni10Ti steel samples with a stress concentrator in a disk shaped inlet were carried out. The peculiarities of α' -martensitic phase formation at various stages of tension were defined in different points on the deformed steel sample.

УДК 539.183.3

ХАРАКТЕРИСТИЧЕСКОЕ РЕНТГЕНОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ, ИНДУЦИРОВАННОЕ ТЯЖЕЛЫМИ ИОНАМИ

Горлачев И.Д., Дегтярев В.В., Иванов И.А., Лысухин С.Н., Пеньков Ф.М.

Институт ядерной физики НЯЦ РК, Казахстан, Алматы

На ускорителе ДЦ-60 в г. Астана была продолжена серия работ по изучению сечений выхода характеристического рентгеновского излучения и исследованию спектральных особенностей, возникающих при взаимодействии тяжелых ускоренных частиц с тонкими твердотельными мишенями. В настоящей статье представлены результаты проведенных экспериментов. В статье также сделана попытка описания процессов, происходящих при взаимодействии ионов с атомами мишеней. Приведен литературный обзор.

ВВЕДЕНИЕ

Изучение ион-атомных столкновений играет существенную роль в развитии новых моделей их взаимодействий и позволяет получить данные, используемые в других областях науки, таких как атомная физика, астрофизика, физика плазмы, элементный анализ, медицинские исследования, защита окружающей среды [1-6].

Все более возрастающая роль элементного анализа требует развития новых исследовательских направлений, обладающих высокой чувствительностью, точностью и избирательностью при анализе содержаний отдельных элементов. Учитывая особенности взаимодействия тяжелых ускоренных частиц с атомами мишени, представляется перспективным использование метода HPIXE (heavy ion particle induced X-ray emission) на ускорителе ДЦ-60 в г. Астана (Республика Казахстан) для решения задач элементного анализа [7]. В этом случае чрезвычайно важным становится знание сечений выхода характеристического рентгеновского излучения, а также особенностей спектров характеристического излучения, возникающего при взаимодействии ускоренных ионов с атомами мишени. Исследование этих особенностей и определение их основных характеристик позволит в дальнейшем упростить обработку рентгеновских спектров и обеспечит получение более надежных и правильных аналитических данных.

Самые простые условия описания ионизации атомов налетающей частицей с зарядом Z_1 возникают, когда скорость налетающей частицы (v_1) много больше скоростей движения электронов в атоме (v_2). В этом случае применимо борновское приближение для сечения ионизации, первый порядок которого дает зависимость $\sigma \sim Z_1^2$. Так, ускоренный криптон ($Z_1 = 36$) при одной и той же скорости будет давать выход рентгеновских квантов на три порядка больше чем протон. Такой прямой механизм ионизации обычно называют кулоновским. Однако, условия прямой кулоновской ионизации совсем не подходят для целей анализа химического состава, так как ионы, для которых выполняется условия борновского приближения, имеют энергию, при которой открыты каналы ядерных реакций. Поэтому для целей анали-

тической HPIXE требуются гораздо более низкие энергии. Так, оценка кулоновского барьера для открытия канала ядерных реакций, при столкновении ядер криптона составляет [8] 296 МэВ, или 3.5 МэВ/нуклон энергии налетающего иона в лабораторной системе отсчета. Даже при пороговой энергии скорость налетающего иона меньше скоростей электронов не только K -, но и L -оболочки.

При понижении скорости налетающего иона по отношению к скорости электрона атома мишени сечение кулоновской ионизации уже не является пропорциональным Z^2 и значительно падает из-за энергетической зависимости что, казалось бы, делает тяжелоионную PIXE малоприменимой для целей анализа. Однако, как показано в работах [7, 9] даже при относительно невысоких энергиях столкновения сечения ионизации атомов тяжелыми ионами могут на 4 ÷ 6 порядков превосходить сечения ионизации протонами. Пример такого эффекта приведен в работе [10], где показывается, что сечение ионизации K -оболочки углерода ионами аргона с энергией 2 ÷ 3 кэВ/нуклон, такое же, как и протона с энергией 1 МэВ и составляет более 10^6 барн. Качественное объяснение этого эффекта было предложено в работе [11] и заключается в возможности ионизации атомов при столкновении с ионами по молекулярному механизму в момент пересечения термов молекулы, состоящей из налетающего иона и атома мишени. Такой эффект возможен, когда термы, происходящие из K -оболочек одиночных атомов, напрямую пересекаются с термами непрерывного спектра. Иначе, предполагается механизм последовательного перехода от терма к терму вплоть до пересечения с термами непрерывного спектра. Для этого необходимы вакансии в оболочках хотя бы одного из атомов молекулы, которые возникают при прохождении падающего иона через твердотельную мишень. Более того, степень ионизации падающего иона, которая зависит от типа мишени и энергии иона, значительно превышает первоначальную в тракте ускорения. Именно из-за этого максимум сечения ионизации приходится не на равные заряды ядер налетающего иона и атома мишени, а сдвинут примерно на 4 ÷ 5 зарядовых единиц. Так сечения выходов рентгеновского излучения K_α линий ускоренных ионов никеля и брома в области энергий

0.6 ÷ 1.6 МэВ/нуклон на широком диапазоне химических элементов, представленные в работе [12], имеют два острых максимума с полуширинами примерно в один заряд. Второй максимум сечения ионизации приходится на элементы, сдвинутые по заряду на 20-22 единицы [12]. При этом максимумы сечений практически не зависят от энергии падающей частицы и определяются примерным совпадением энергий *K*-оболочек налетающей частицы и атомов мишеней для первого максимума и примерным совпадением энергий *K*-оболочки налетающей частицы и *L*-оболочки атомов мишеней для второго. Сечения выходов излучения от атомов мишеней в работе [12] не исследовались.

Указанное выше экспериментальное подтверждение идеи молекулярного механизма ионизации не являются единственными. Так, в работе [13] показано, что вероятности ионизации аргона бомбардируемого элементами от фосфора до калия имеют резко выраженную ступенчатую (от 0 до 1) зависимость от расстояния между ядрами образующихся квазимолекул. Эти расстояния отвечают области пересечения термов этих молекул. Прямое подтверждение факта существования квазимолекул с вакансиями в электронных оболочках получено при регистрации молекулярного рентгеновского излучения [14], которое значительно мягче атомного. В работе [15] наблюдались рентгеновские переходы *M*-линий объединенных атомов с зарядами 132, 143, и 145 в опытах по бомбардировке ионами ^{53}I мишеней из ^{79}Au , ^{90}Th и ^{92}U .

Молекулярные механизмы ионизации атомов предполагают не только сильную ионизацию падающих ионов из-за отсутствия электронов в верхних оболочках, но и обязательное присутствие вакансий на *L*-оболочках для *K*-переходов и *M*-оболочках для *L*-переходов. Наличие таких вакансий приводит к наблюдаемым сдвигам линий рентгеновской эмиссии (РЭ) у падающих ионов. При этом, сдвиги могут быть и положительные и отрицательные в зависимости от того, на что больше влияют вакансии. Если вакансии понижают энергию *K*-оболочки больше чем *L*, сдвиги положительные, иначе – отрицательные [9]. Величины этих сдвигов зависят от распределения вакансий и заряда ядра падающих ионов. При этом, максимальный расчетный сдвиг превышает 100 эВ уже для ионов с Z_1 больше 20 [9]. Существует и второй эффект, приводящий к эффективному сдвигу линий, связанный с появлением множества сателлитных пиков из-за снятия вырождения в *L*- и *M*-оболочках при большом количестве вакансий. Эти вакансии уширяют спектры линий и могут сдвинуть «центр тяжести» наблюдаемой линии.

В случае больших сечений ионизации атомов мишени и уширение, и сдвиг линий можно отнести к особенностям характеристическим спектров. Такие условия можно реализовать при больших энергиях даже для прямой кулоновской ионизации. В частности, в работе [16], исследовались переходы на *L* оболочку пал-

ладия при бомбардировке ионами кислорода и неона с энергиями 17.4 и 8.9 МэВ/нуклон соответственно. Используя спектрометр с волновой дисперсией, авторы работы наблюдали достаточно широкие пики с полуширинами в несколько сотен эВ, которые состояли из совокупности сателлитных пиков.

В связи с перспективами развития метода NPIXE на ускорителе ДЦ-60, представленная работа сфокусирована на выявлении особенностей характеристических спектров, таких как энергетическое смещение *K*- и *L*-линий атомов мишени и налетающих частиц и ширина этих линий на полувывсоте, а также определении сечений выхода рентгеновского излучения. Эксперименты проводились на ускоренных ионах $^{14}\text{N}^{2+}$, $^{40}\text{Ar}^{6+}$, $^{84}\text{Kr}^{13+}$ с энергиями 1 МэВ/нуклон и 1.4 МэВ/нуклон. В качестве мишеней использовались пленки Ti, Cr, Cu, Ge, Zr, Nb, Mo, Ag, Sn, Ta, W, Pb толщиной 16 ÷ 116 мкг/см², напыленные на кремниевую проводящую подложку.

ОБЗОР ПРЕДЫДУЩИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

История наблюдения РЭ атомов, возбужденных заряженными частицами, началась с начала двадцатого века в опытах по бомбардировке атомов α -частицами с характерными энергиями α -распадов 5 ÷ 6 МэВ. Уже тогда было высказано предположение о возможном использовании ускоренных заряженных частиц с энергией 1 ÷ 2 МэВ/нуклон для анализа химического состава образцов по характерным спектрам рентгеновской эмиссии, которая сопровождает процессы соударения частиц с исследуемой мишенью. Позже были измерены и идентифицированы РЭ-спектры всех элементов таблицы возбуждения, на основании которых был сформулирован метод анализа химического состава PIXE. При этом в качестве бомбардирующих частиц обычно использовались протоны или α -частицы.

Ионизация внутренних оболочек атомов мишени при взаимодействии с тяжелыми ионами стала интенсивной областью исследования в начале шестидесятых годов 20-го века благодаря появлению современных ускорителей заряженных частиц, развитию технологии детектирования рентгеновского излучения, методов обработки данных и созданию высокопроизводительных компьютерных систем.

Получение точных оценок сечений образования вакансий на внутренних оболочках атомов долгое время было целью физики ионно-атомных столкновений. За последние тридцать лет было выполнено большое количество экспериментальных исследований по ионизации внутренних оболочек атомов мишени легкими ионами ($Z_1 \leq 2$), следствием чего стала накопленная база данных сечений, охватывающая большой диапазон относительных скоростей и атомных номеров мишеней [17]. Эти данные хорошо описываются приближением возмущенного стационарного состояния (ЕСРССР теорией) [18-25]. В то же время очень небольшое количество данных

относится к системам, в которых атомный номер налетающей частицы превышает 10.

Myerhoff et al. [26–33] в семидесятых годах 20-го века провели эксперименты по измерению сечений образования вакансий на K -оболочке для широкого диапазона мишеней и налетающих ионов. Они использовали ускоренные ионы Br, Kr, I, Xe и Pb в диапазоне энергий $0.1 \div 4$ МэВ и изучили различные механизмы ионизации внутренних оболочек. В симметричных столкновениях ($Z_1/Z_2 \approx 1$) на низких скоростях ($v_1/v_{2k} < 1$, где v_1 – скорость налетающей частицы и v_{2k} – средняя скорость K -электрона атома мишени) сечение образования вакансий было описано с использованием метода молекулярных орбиталей (МО) [11, 34–36].

Anholt et al. [37–44] изучали ионизацию внутренних оболочек атомов при их столкновениях с релятивистскими Xe и U в энергетическом диапазоне налетающих частиц 82 и 300 МэВ/нуклон и 105 и 955 МэВ/нуклон соответственно. В деталях были изучены процессы ионизации, возбуждения, радиационной задержки, радиационного электронного захвата. Были также исследованы релятивистские эффекты для волновых функций, экранирование в системе мишень – атом, влияние поперечного поля на сечение ионизации K -оболочки [37, 38, 45], а также влияние возбужденных состояний налетающих ионов на зарядовые состояния этих релятивистских ионов при движении в конденсированном веществе. Сравнение измеренных сечений захвата электрона с расчетами радиационных и нерадиационных захватов показывает, что нерадиационный захват при возбужденном состоянии налетающей частицы доминирует для больших Z мишени. Результаты измерений зарядового состояния, рентгеновского излучения и радиационного захвата фотонов хорошо согласуются с предсказаниями, основанными на борновском приближении плоских волн (PWBA).

Liatard et al. [46] выполнили измерения сечений ионизации на твердотельных мишенях в диапазоне Z_2 от 27 до 90 с использованием ускоренных до 30 МэВ/нуклон Ne и Ar. Их результаты показали хорошее согласие с предсказаниями теории возмущенного стационарного состояния (CPSSR), но имеют небольшую систематическую погрешность для зависимостей сечений от типа ускоренных частиц и атомного номера мишени. Ими также было показано, что захват K -электрона налетающей частицей для Ag существенно влияет на сечение ионизации K -оболочки. Сечения выхода рентгеновских квантов с K -оболочки в твердотельных мишенях ($Z = 13, 22, 26, 29, 32, 40, 42, 46$ и 50) для ускоренных пучков H, N, Ne и Ar энергией 30 МэВ/нуклон были представлены Horvat et al. [47]. Полученные сечения ионизации K -оболочки для H, N и Ne хорошо согласуются с предсказаниями CPSSR-теории, но для Ag наблюдаются большие отклонения для больших атомных номеров мишеней ($Z_2 = 26 \div 40$).

Zou et al. [48] изучили выходы K -рентгеновского излучения, возникающего при прохождении ионов аргона с энергиями в диапазоне $1 \div 7.5$ МэВ/нуклон через твердотельные мишени с $Z = 6 \div 74$. Зависимость интенсивностей K_α аргона сателлитов и гиперсателлитов от атомного номера мишени (Z_2) была описана с использованием модели МО в близкосимметричных и низкоэнергетичных столкновениях. Была исследована также средняя вероятность образования вакансий L -оболочки, имеющая схожую зависимость от Z_2 и не зависящая от энергии налетающей частицы.

Kravchuk et al. [49] исследовали столкновения ускоренных углерода и неона с энергиями 8.3 МэВ/нуклон и 30 МэВ/нуклон соответственно с мишенями Ag и Th при нулевых прицельных параметрах. Результаты показали хорошее согласие с вычислениями, выполненными в рамках полуклассического приближения (SCA). В другом эксперименте [50] было показано, что сечения выхода K -рентгеновского излучения, индуцированного 20 МэВ/нуклон ионами H, C, O и Ne на мишенях Ta, Pb и Th, также как и 80 МэВ/нуклон пучками H, C, O на Pb мишени с погрешностью 10% согласуются с предсказаниями PWBA модели. Они также обнаружили, что вероятность одновременной ионизации L -оболочки быстро растет в зависимости от атомного номера налетающего иона для энергии 20 МэВ/нуклон, в то время как для энергии 80 МэВ/нуклон имеется лишь слабое увеличение. При этом степень одновременной ионизации L -оболочки была относительно небольшой в изученных реакциях – в среднем менее одной вакансии на L -оболочке.

В двух современных исследовательских работах [51, 52] зависимость образования K -вакансий от Z_1 для мишеней из Al и Cu были изучены с использованием 10 МэВ/нуклон ускоренных частиц в диапазоне $Z_1/Z_2 = 0.34 \div 6.38$. Отношения скоростей v_1/v_{2k} для этих сталкивающихся систем составляли 0.79 и 1.87 для Cu и Al соответственно. Было обнаружено, что для ионов с зарядом Z_1 выше 18 существенные вклады в измеряемые выходы K -рентгеновских квантов давали вторичные процессы: фотоионизация и ионизация вторичными электронами. К тому же измеренные сечения образования K -вакансий оказались намного меньше предсказанных ECPSSR (поздняя версия CPSSR теории, учитывающая энергетические потери) [24]. В случае измерений на Al большие различия между предсказаниями ECPSSR и экспериментальными результатами наблюдались выше $Z_1 = 10$ при существенно более быстром увеличении теоретических сечений как функции Z_1 по сравнению с экспериментальными сечениями. Для $Z_1=83$ (Bi) теоретические сечения на алюминии были в 15 раз больше, чем экспериментальные. При измерениях на меди сечение образования K -вакансий выходит в насыщение для Z_1 выше 54, при этом ECPSSR-сечения превышают экспериментальные

начиная с $Z_1 = 18$, и отличаются от них в 18 раз для $Z_1 = 83$. Эти результаты имели существенное значение в двух аспектах:

1. Они продемонстрировали, что для получения точных экспериментальных величин сечений образования K -вакансий тяжелыми ионами необходимо учитывать вторичные процессы;

2. Они подчеркнули тот факт, что пока еще отсутствует теоретический метод, способный обеспечить хотя бы грубые оценки сечений образования K -вакансий при тяжелоионных столкновениях (большие значения Z_1).

Вместе с тем очень немного работ, в том числе и среди современных публикаций, имеют систематическую направленность, охватывая широкий диапазон Z_1 , Z_2 и энергий налетающих частиц. К таким исследованиям можно отнести серию работ W. E. Meyerhof et al. по взаимодействию Br, Kr, I, Xe, Pb в диапазоне энергий $0.1 \div 4$ МэВ/нуклон с широким типом мишеней [26, 28–33], выполненную в 70-е годы, и работу V. Horvat et al. 2006 года [94], где изучались взаимодействия ионов с $Z_1 = 6 \div 83$ в диапазоне энергий $2.5 \div 25$ МэВ/нуклон с мишенями $Z_2 = 17 \div 32$. Авторы остальных публикаций ограничивались небольшим диапазоном значений Z_1 , Z_2 , E_0 . Учитывая это, работы, начатые в ИЯФ НЯЦ РК по систематическому исследованию сечений выхода рентгеновского излучения при взаимодействии тяжелых ионов с атомами мишеней, имеют большое значение не только для постановки метода элементного анализа, но и для задачи наполнения базы данных выхода рентгеновского излучения.

ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ К ОПИСАНИЮ ИОНИЗАЦИИ ВНУТРЕННИХ ОБОЛОЧЕК

Существует несколько теоретических подходов для описания процессов ионизации внутренних оболочек при столкновении ускоренных тяжелых заряженных частиц с атомами мишени.

Упомянутое выше борновское приближение играет ключевую роль в развитии различных теоретических подходов. В частности, ЕСПСР появился как результат усовершенствования PWBA. Помимо них для теоретического описания физических явлений ионно-атомных столкновений используются методы полуклассического приближения (SCA), классического бинарного столкновения (BEA), метод геометрической модели (GM) и молекулярных орбиталей (МО).

Области применимости методов PWBA, SCA, МО представлены на рисунке 1 [53]. Область, в пределах которой лежат наши исследования, отмечена на рисунке зеленым цветом.

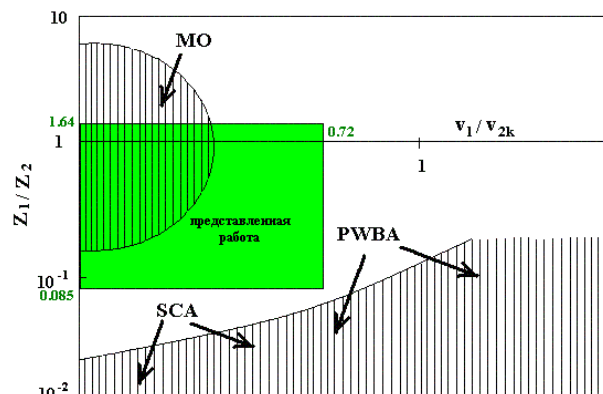


Рисунок 1. Области применимости различных схем описания в зависимости от отношения зарядов налетающей частицы и атома мишени Z_1/Z_2 и скоростей иона и электрона K -оболочки v_1/v_{2k} . Зеленым цветом отмечена область представленных исследований. На осях зеленым цветом указаны границы этой области

Борновское приближение плоских волн. PWBA является методом квантового возмущения, в котором используется первое борновское приближение для описания взаимодействия между налетающей частицей и атомом мишени. Согласно [54, 55] метод обычно применим при $\frac{Z_1 \cdot e^2}{\hbar \cdot v_1} \leq 1$, где Z_1 – атомный

номер налетающей частицы, v_1 – скорость иона и $e^2/\hbar$ – скорость электрона в атоме водорода. В дополнение к этому условию в PWBA предполагается, что взаимодействие между налетающей частицей и атомом мишени является очень слабым, электрон мишени является “замороженным” во время столкновения, так как время реакции электрона гораздо больше времени взаимодействия, налетающий ион действует как точечный заряд и электронная структура не оказывает влияние на процесс взаимодействия [18].

Детали расчета сечений ионизации применительно к методу PWBA можно найти в ссылке [53]. Сечение ионизации K -оболочки в этом случае определяется из формулы [18, 54, 55]:

$$\sigma_K^{PWBA} = (\sigma_{0K} / \theta_K) \cdot F_K \left(\frac{\eta_K}{\theta_K^2}, \theta_K \right) \quad (1)$$

$$\sigma_{0K} = 8\pi a_0^2 (Z_1 / Z_{2K})^2 \quad (2)$$

где $a_0 = 0.5291771 \text{ \AA}$ – борковский радиус и $Z_{2K} = Z_2 - 0.3$ – экранированный заряд ядра мишени. В равенстве (1) величина θ_K указывает, во сколько раз энергия ионизации атома мишени превышает энергию ионизации атома водорода:

$$\theta_K = U_K / Z_{2K}^2 R_\infty \quad (3)$$

где U_K – энергия связи электрона на K -оболочке и $R_\infty = 13.6 \text{ эВ}$ – постоянная Ридберга. Параметр η_K в равенстве (1) определяет отношение скоростей иона и электрона K -оболочки:

$$\eta_k = \left(\frac{v_1}{v_{2k}} \right)^2.$$

Расширенные таблицы величин функции F_k (равенство (1)) для K - и L -оболочек были представлены Khandelwal и Choi [56, 57]. Сечение ионизации K -оболочки как функцию отношения скоростей η_k можно найти в ссылках [54, 58].

PWBA хорошо согласуется с экспериментальными данными для легких налетающих частиц на высоких скоростях. Разными исследователями предпринимались попытки улучшения метода с целью преодоления имеющихся ограничений. Примерами могут служить борновское приближение с искаженными волнами (DWBA) [59], которое включает взаимодействие между налетающей частицей и ядром мишени, метод сплошной деформированной волны (CDW) [60, 61], в котором кулоновские взаимодействия в явном виде содержатся в волновых функциях начального и конечного состояний и так далее. Учет кулоновского отталкивания [24], потерь энергии налетающей частицы [62–64], релятивистских эффектов [65–69] и эффектов атомной поляризации [18, 19, 21] приводят к теории ECPSSR.

Приближение возмущенного стационарного состояния. Подход ECPSSR учитывает возмущения первого порядка и является наиболее развитым подходом, основанным на PWBA. Она включает коррекции энергетических потерь налетающих ионов (E), кулоновское отклонение траектории налетающих частиц (C), эффекты связи и поляризации в рамках возмущенного стационарного состояния (PSS) электронов мишени и релятивистские эффекты (R). Коррекция кулоновского отклонения является очень важной для низкоэнергетичных частиц. Эффект связи имеет отношение к увеличению энергии связи электрона при малых параметрах взаимодействия, когда формируется комбинированное поле налетающего ядра и ядра мишени. Эффект поляризации является следствием искажения волновой функции электрона налетающей частицей при прицельных параметрах больше радиуса электронной оболочки.

В дополнение к перечисленным выше коррекциям ECPSSR также учитывает образование вакансий посредством электронного захвата налетающим ионом в рамках модели Oppenheimer-Brinkman-Kramers [70 - 73].

Детали ECPSSR-теории и примеры вычислительных процедур можно найти в ссылках [24, 74]. Сечение ионизации K -оболочки в ECPSSR описывается следующим выражением [74]:

$$\sigma_K^{ECPSSR} = C_{BK}^E (dq_{0K} \varsigma_K) \sigma_K^{PWBA} \left(\frac{m_K^R \left(\frac{\xi_K}{\varsigma_K} \right) \eta_K}{(\varsigma_K \theta_K)^2}, \varsigma_K \theta_K \right) \quad (4)$$

где C_{BK}^E – коррекция кулоновского отклонения, величина $d = Z_1 Z_2 / (M v_1^2)$ определяет половину минимального расстояния при лобовом столкновении, q_{0K} – приблизительный минимальный переданный момент (U_{2K}/v_1), ξ_K – корректирующий фактор для эффектов связи и поляризации, m_K^R – релятивистский корректирующий фактор и ξ_K – переопределенное отношение скоростей, задаваемое как $2v_1/\theta_K v_{2K}$.

ECPSSR-вычисления согласуются с экспериментальными результатами в пределах 10 – 20% для протонов и α -частиц, бомбардирующих мишени с Z_2 в диапазоне $10 \leq Z_2 \leq 92$ [75].

Приближение бинарного столкновения. Приближение бинарного столкновения (BEA) предполагает, что ионизация определяется классическим бинарным столкновением между заряженной частицей и электроном мишени, а ядро мишени и оставшиеся электроны не играют роли в этом процессе, за исключением обеспечения распределения первоначального момента и энергии связи выбиваемого электрона.

Детальный анализ классического кулоновского взаимодействия между двумя движущимися заряженными частицами приведено Gryzinski [76–78]. Rudd et al. [79] расширили теорию, используя квантово-механическое распределение скорости для электрона мишени.

Выражение для сечения ионизации K -оболочки в этом случае определяется как [76-78, 80]:

$$\sigma_K(E_i) = \frac{N_K Z_1^2 \sigma_0}{U_{2K}^2} G(V), \quad (5)$$

где U_{2K} – энергия связи электрона, N_K – число электронов на K -оболочке и $\sigma_0 = \pi e^4 Z_1^2 = Z_1^2 \cdot 6.56 \cdot 10^{-14} \text{ см}^2 \text{ эВ}^2$ (выражение 20 в ссылке [78]).

Множитель $G(V)$ является функцией отношения скоростей $V = v_1/v_{2K}$ и приводится в ссылках [76-78, 80]. BEA прогнозирует, что произведение квадрата энергии связи на сечение ионизации, деленное на квадрат атомного номера налетающей частицы, является универсальной функцией отношения скоростей V .

Сравнение предсказаний BEA, PWBA и экспериментальных измерений сечений ионизации K -оболочки приведено в ссылках [53, 58]. PWBA предполагает, что взаимодействие между налетающей частицей и атомом слабо и взаимодействие рассматривается как квантово-механическое (как возмущение), в то время как BEA рассматривает классическое столкновение налетающей частицы и свободно электрона с заданным распределением скорости.

Полуклассическое приближение. Полуклассическое приближение (SCA) [65, 81-83] было введено Bang и Hansteen [81], рассчитавшими сечение ионизации K -оболочки для низкоэнергетичных налетающих частиц. SCA позволяет исследовать детали процесса столкновения как функцию прицельного параметра. Приближение является производной от ос-

новых принципов квантовой механики (первый порядок времязависимой теории возмущений), так что число параметров, вводимых в относительно искусственный метод, минимизировано. SCA учитывает кулоновское отталкивание между налетающим ионом и мишенью, предполагая гиперболическую траекторию движения иона. Для больших энергий SCA эквивалентно PWBA [81, 84-86].

Дифференциальное сечение ионизации атомарных электронов при конечной энергии E_f , задаваемое первым порядком времязависимой теории возмущений, определяется как [81, 84]:

$$\frac{d\sigma}{dE_f} = \frac{2\pi}{\hbar^2} \int_0^\infty b db \left| \int_{-\infty}^\infty e^{i\omega t} \langle \psi_f | V(r, t) | \psi_i \rangle dt \right|^2, \quad (6)$$

где b – прицельный параметр, $\omega = (E_f + u_i)/\hbar$, u_i – энергия связи электрона в первоначальном связанном состоянии и E_i – энергия электрона в конечном состоянии. Величина $V(r, t)$ – времязависимый кулоновский потенциал между налетающей частицей и электроном мишени, ψ_i , ψ_f – одноэлектронные волновые функции в самосогласованном поле, поскольку в теории возмущений первого порядка возможно только одноэлектронное возбуждение. Вероятность ионизации как функция прицельного параметра b задается выражением:

$$I_b = \int_0^{E_{\max}} \left(\frac{dI(b)}{dE_f} \right) dE_f, \quad (7)$$

где

$$\frac{dI(b)}{dE_f} = |a_{f,i}(t \rightarrow \infty)|^2, \quad a_{f,i}(t \rightarrow \infty)$$

– амплитуда возбуждения, задаваемая как

$$a_{f,i}(t \rightarrow \infty) = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^\infty dt e^{i\omega t} \left\langle E_f \left| \frac{-Z_1 e^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}_b(t)|} \right| i \right\rangle.$$

Матричные элементы, входящие в выражение (6), затабулированы в работе [81].

Вместо водородоподобных волновых функций для связанных электронов Trautmann et al. [60-62, 65, 83, 87, 88] использовали релятивистскую (Хартри-Фок) волновую функцию электрона. Они также сделали коррекции для эффектов связи и поляризации, ядерных деформаций, экранирования траектории движения и эффектов отражения. Обзоры и коррекции SCA можно найти в ссылках [60, 61, 65, 84, 87-89]. Эти коррекции показали существенное улучшение согласия между теорией и экспериментом.

Геометрическая модель. Для тяжелых налетающих частиц теории BEA и SCA неприменимы, так как при их использовании вероятности ионизации превышают единицу. Для описания многократной ионизации в столкновениях тяжелых ионов с атомами, с учетом сильных возмущений, была разработана геометрическая модель (GM) [90-92]. Часть выби-

тых ионами электронов может быть представлена как вероятность ионизации на электрон. Как правило, вероятность ионизации электрона мишени задается выражением:

$$P_{nim}(b) = \iiint |\psi_{nim}(\mathbf{r})|^2 \eta(b) p dp dz d\phi, \quad (8)$$

где $\mathbf{r}$ – радиус-вектор положения электрона, $p dp dz d\phi$ – элемент объема в цилиндрических координатах, b – расстояние между траекториями движения электрона и иона, $\psi_{nim}(\mathbf{r})$ – волновая функция атома мишени и $\eta(b)$ – функция эффективности, которая может быть выбрана:

$$\eta(b) = \begin{cases} 0 & \text{при } b > b_0 \\ 1 & \text{при } b \leq b_0 \end{cases}$$

с b_0 , задаваемой сечением ионизации: $b_0 = \sqrt{\frac{\sigma}{\pi}}$. Если σ определяется из BEA (выражение (5)), то согласно [91]

$$b_0 = \frac{Z_1 e^2}{v_1} V \sqrt{\frac{2G(V)}{I}},$$

где $V = \frac{v_1}{v_2}$ – относительная скорость падающего иона, $G(V)$ – универсальная функция скорости [80] и I – экспериментальная энергия связи, зависящая от $\frac{v_2^2}{2}$.

Для определения сечения можно ввести универсальную переменную X : $X = a_n b_0$,

где

$$a_n = \frac{2}{Z_2 n} = 2v_2$$

– атомный параметр. Из приведенных выше выражений универсальная переменная X может быть записана:

$$X = 4 \frac{Z_1 V \sqrt{G(V)}}{v_1}.$$

Таким образом, GM предсказывает, что средняя вероятность ионизации на электрон при нулевом прицельном параметре зависит только от универсального масштабного фактора X . Экспериментальная проверка этой модели опубликована в ссылках [93, 94].

Метод молекулярных орбиталей. Модель молекулярных орбиталей (МО) используется для описания ион-атомных столкновений, в которых заряды ядер налетающего иона и атома мишени сравнимы, при этом скорость иона намного меньше орбитальной скорости электрона мишени. В первом борновском приближении возмущение существенно возрастает при уменьшении скорости налетающей час-

тицы (для $\frac{v_1}{v_{2K}} \approx 1$ и ниже), за исключением случаев,

когда отношение $\frac{Z_1}{Z_2}$ существенно ниже 0.1, так что

применимость первого борновского приближения ограничивается асимметричными столкновениями в режиме быстрого столкновения. С другой стороны, медленные или симметричные (или близкие к симметричным) столкновения являются областью применимости МО модели, которая учитывает взаимное искажение атомных орбиталей сталкивающихся партнеров. Если два атома сталкиваются медленно, электроны внутренних оболочек адиабатически стремятся к изменению своих орбитальных состояний для двухъядерной системы и кулоновское возбуждение или ионизация становятся маловероятными. Во время столкновения формируется квазимолекула. Эксперименты на медленных ион-атомных столкновениях показали, что при благоприятных условиях вакансии на внутренних оболочках могут, тем не менее, образовываться с большой вероятностью. С теоретической точки зрения некоторое понимание этого режима столкновения достигается посредством применения идей, позаимствованных из квантовой теории двухатомных молекул [95, 96].

Модель, предложенная Fano и Lichten [11, 36, 97, 98] для медленных симметричных или близких к симметричным столкновениям, предполагает, что 1) электроны внутренних оболочек занимают независимо-электронные молекулярные орбитали, 2) эти орбитали коррелируют с такими же уровнями отдельного и объединенного атома как одноэлектронная водородоподобная молекулярная орбиталь, 3) эффект влияния других электронов игнорируется, за исключением того, что они экранируют потенциал ядра (т.е. корреляционные диаграммы строятся исходя из одноэлектронных корреляций, но в промежутке – независимые электронные уровни многоэлектронных атомов), 4) возбуждение наиболее вероятно, когда возбужденные МО становятся вырожденными или близки к вырождению с МО, содержащими вакансии, 5) принцип Паули входит только в статистический раздел для определения первоначального положения МО, между которыми происходят переходы. Концептуальная простота модели Fano-Lichten можно пояснить на примере системы симметричного столкновения $\text{Ag} + \text{Ag}$, показанной на рисунке 2 [58]. Этот тип диаграммы часто называют корреляционной диаграммой. Во время столкновения состояния связанных независимых электронов сохраняются в двухцентровом поле системы налетающий ион-атом мишени. Когда атомы находятся на большом расстоянии друг от друга, электроны занятых уровней внутренних и электроны незанятые внешних оболочек взаимодействуют слабо или не взаимодействуют вообще.

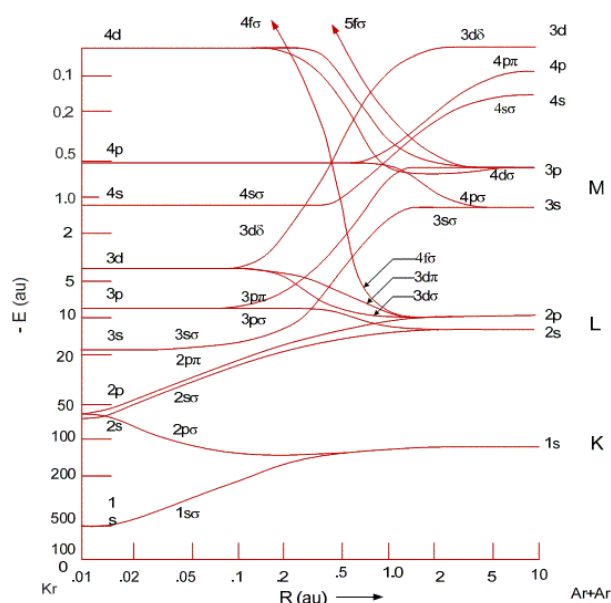


Рисунок 2. Энергетическая диаграмма системы симметричных столкновений Ar-Ar

При изменении межъядерного расстояния R во время столкновения могут иметь место существенные изменения в порядке энергетических уровней, приводящие к сильному взаимодействию занятого квазимолекулярного состояния с одним или более незанятыми электронными состояниями. При этом электрон может перейти из занятого в незанятое состояние, создавая вакансию на внутренней оболочке. На рисунке 2 уровни, соответствующие $R = \infty$, соответствуют отдельным атомам Ar , а при $R = 0$ – объединенному атому Kr . Электрон-электронные взаимодействия в рамках модели независимых частиц обуславливают переходы между молекулярными орбиталями при сохранении четности ($s \leftrightarrow s$, $s \leftrightarrow d$, $p \leftrightarrow p$, $p \leftrightarrow f$ и т.д.) и равенстве углового момента λ ($\theta \leftrightarrow \theta$, $\pi \leftrightarrow \pi$ и т.д.). Ротационные переходы между молекулярными орбиталями происходят при сохранении четности и $\Delta\lambda = \pm 1$ ($\theta \leftrightarrow \pi$, $\pi \leftrightarrow \delta$ и т.д.). Электронная корреляция (конфигурация взаимодействий) разрешает двухэлектронные или четырехэлектронные (в случае $\lambda \neq 0$) переходы между парами молекулярных орбиталей. При сближении атомов все эти эффекты обуславливают переходы M -электронов на верхние уровни при $R \sim 1 \div 2$ атомных единиц. При $R \sim 0.5$ атомных единиц один $4f\sigma$ электрон может быть передан на $4p\sigma$, $3p\pi$ (молекулярная орбиталь не заполнена) или $4p\pi$ уровни. При дальнейшем сближении другие L -электроны могут перейти на более высокие оболочки. Возбуждение K -оболочки может иметь место только на очень малых межъядерных расстояниях.

Модель Fano-Lichten дает рациональную интерпретацию энергетических потерь, возбуждения внутренних оболочек и характерных межъядерных расстояний для возбуждения и возмущений. В частности, предска-

зание оже-электронной эмиссии в столкновении тяжелых частиц было в деталях подтверждено несколькими экспериментальными группами. Дополнительное подтверждение предсказаний этой модели было получено из наблюдений рентгеновского излучения в симметричных столкновениях Saris et al. [14].

В дальнейшем эти идеи использовались в исследованиях Ar-Ar [11] и Ne-Ne [99] столкновениях и применялись Barat и Lichten [36] для более сложных случаев гетероядерных столкновений. Подобный анализ формирует в настоящее время рамки понимания возбуждения внутренних оболочек при низкоэнергетических ион-атомных столкновениях. Он успешно использовался для интерпретации большого количества экспериментальных данных, где формирование вакансий на внутренних оболочках исследуется как анализом энергетических потерь, так и оже-электронной или рентгеновской эмиссией. Детали результатов этих экспериментов и их интерпретация в рамках Fano-Lichten модели можно найти у Barat и Lichten [36], Lichten [99], Garcia et al. [100], Briggs [101], Lapicki и Lichten [102], Anholt [103, 104] и статьи Meyerhof [26, 27, 29, 30, 32, 105, 103, 106].

ЭКСПЕРИМЕНТ

Экспериментальное оборудование. Для получения ускоренных пучков использовался ускоритель тяжелых ионов ДЦ-60 в г. Астане.

В таблице 1 приведены энергии и токи ускоренных ионов на мишени.

Таблица 1. Токи ускоренных пучков циклотрона ДЦ-60

Ион	Е, МэВ/нуклон	I, мкА
¹⁴ N	1.22	10
⁴⁰ Ar	0.6	5
⁴⁰ Ar	0.94	3
⁴⁰ Ar	1.35	3
⁸⁴ Kr	1.03	0.5
⁸⁴ Kr	1.44	0.3
¹³² Xe	1.0	0.17
¹³² Xe	1.52	0.17

Мишенная камера включает набор входных диафрагм, используемых для формирования на образце пучка размером ~3 мм в диаметре. Перед мишеносдержателем располагается магнитная система подавления вторичных электронов, обеспечивающая на поверхности образца магнитную индукцию ~150 Гс.

Для регистрации рентгеновских квантов в камере предусмотрен Si(Li) детектор с площадью кристалла 30 мм² в комплекте со сменщиком рентгеновских фильтров, предусилителем, спектрометрическим усилителем и аналого-цифровым преобразователем. Набор спектрометрической информации осуществлялся с использованием программного обеспечения MAESTRO.

В экспериментах перед детектором располагались Al или Be фольга толщиной 0.5 мм для умень-

шения вклада в регистрируемый спектр низкоэнергетичного излучения.

Параметры измерения:

- Расстояние от выходной диафрагмы до мишени – 11.2 см.
- Расстояние от мишени до детектора – 19.3 см.
- Угол между пучком и нормалью к мишени – 16°.
- Угол между детектором и нормалью к мишени – 16°.
- Угол между детектором и осью пучка – 32°.

Мишени. Как известно из литературных источников (например, [107]), сечение выхода флуоресценции сильно зависит от энергии первичного пучка. Учитывая, что при прохождении ускоренного ионного пучка через облучаемый образец происходит потеря энергии частиц за счет взаимодействия с электронами и ядрами мишени, энергия ионов на выходе из образца может существенно отличаться от первоначальной энергии пучка. Доля теряемой энергии определяется в этом случае средним атомным номером и толщиной мишени. В интегральном спектре рентгеновского излучения, регистрируемого детектором, присутствуют кванты, выходящие из разных слоев образца и возбуждаемые, таким образом, частицами разных энергий. Выделить из общего рентгеновского спектра от толстого образца (потери энергии в образце сравнимы с энергией пучка) долю квантов, приходящихся на каждый отдельный энергетический слой, и построить зависимость выхода рентгеновского излучения от энергии пучка чрезвычайно затруднительно. Поэтому в нашем случае измерение сечений проводилось на тонких пленках, потери энергии первичного пучка в которых гораздо меньше энергии налетающих ионов. В этом случае энергия ускоренных частиц считается неизменной на всем пути прохождения ионов через вещество мишени. При этом для расчета сечения выхода флуоресценции возникает необходимость измерения толщины слоя, участвующего в процессе испускания характеристического излучения.

Измерение сечений проводилось на пленках чистых элементов, напыленных методом ионно-плазменного осаждения на проводящую кремниевую подложку. Выбор типа подложки определяется несколькими факторами: 1. Необходимостью снятия заряда с облучаемого образца. 2. Большими тепловыми нагрузками на образец – используемый кремний имеет хорошую теплопроводность. 3. Подложка должна давать минимальный вклад в регистрируемый рентгеновский спектр. Используемые в измерениях фильтры позволяют практически полностью подавить линию кремния (1.74 кэВ).

В таблице 2 представлены толщины используемых пленок и относительные потери энергии ускоренных ионов в них.

Таблица 2. Толщины напыленных пленок, энергетические потери в них и средние значения энергий для ускоренных ионов

Тип мишени	Толщина, мкг/см ²	Относительные потери энергии ионов при $E_0 = 1 \text{ МэВ/нуклон}$ $\Delta E/E_0$, %		
		¹⁴ N	⁴⁰ Ar	⁸⁴ Kr
Ti	16	0.5	0.7	0.6
Cr	46	1.5	2.0	1.7
Cu	77	2.1	2.6	2.4
In	40	0.9	1.1	1.0
Ge	87	2.2	2.8	2.6
Zr	50	1.2	1.5	1.4
Nb	22	0.6	0.7	0.7
Mo	72	1.7	2.1	1.9
Ag	58	1.2	1.5	1.5
Sn	41	0.8	1.0	1.0
Ta	63	1.0	1.2	1.1
W	116	1.7	2.1	1.9
Pb	71	1.0	1.3	1.2

Для анализа толщин напыленных пленок использовался метод резерфордского обратного рассеяния на протонах с энергией 1 МэВ, развитый в ИЯФ на ускорителе УСП-2-1. Обработка полученных спектров, вычисление толщин пленок и расчет энергетических потерь ионов в веществе проводились с применением программ RUMP и SRIM [108].

Как следует из таблицы 2, отношение потерь к энергии первичного пучка $\Delta E/E$ для всех типов ионов и мишеней лежит в диапазоне от 0.5% до 2.6%. Это дает право считать, что используемые в экспериментах образцы являются тонкими, и, таким образом, не учитывать изменение сечений, связанное с потерей энергии ионов в пленках.

Анализ на тонких пленках позволяет также не учитывать при расчете сечений выхода флуоресценции поглощение рентгеновского излучения в самом материале пленки.

Использование фильтров. В экспериментах по определению сечений выхода флуоресценции использовались Be и Al фильтры толщиной 0.5 мм, устанавливаемые непосредственно перед детектором. Бериллиевый фильтр применялся для K-переходов Ti, Cr, Cu и Ge. Для всех остальных K- и L-переходов использовался алюминиевый фильтр.

Причины использования фильтров в экспериментах демонстрируют спектры, представленные на рисунке 3.

На рисунке 3 (левый верхний спектр) показан рентгеновский спектр без фильтра, полученный при облучении Cu-пленки ускоренным пучком $^{14}\text{N}^{2+}$. В левой части спектра наблюдаются интенсивные пики, соответствующие тормозному излучению электронов в материале мишени и кремнию подложки. Эти пики не несут аналитической информации, но приводят к дополнительной загрузке спектрометрического тракта и появлению паразитных рентгеновских линий, соответствующих двойным и тройным наложениям. Использование бериллиевого фильтра (правый верхний спектр) позволяет существенно уменьшить, а в случае алюминиевого фильтра (левый нижний спектр) вовсе исключить, вклад мягкого излучения. Это особенно важно при анализе K-линий элементов с большим Z_2 (Ag, Sn, In), имею-

щих относительно небольшие сечения ионизации. В этом случае для получения требуемой статической достоверности площади под пиком приходится увеличивать ток пучка на облучаемом образце, что приводит при отсутствии фильтра к возрастанию “мертвого времени” спектрометрического тракта и появлению спектральных паразитных искажений.

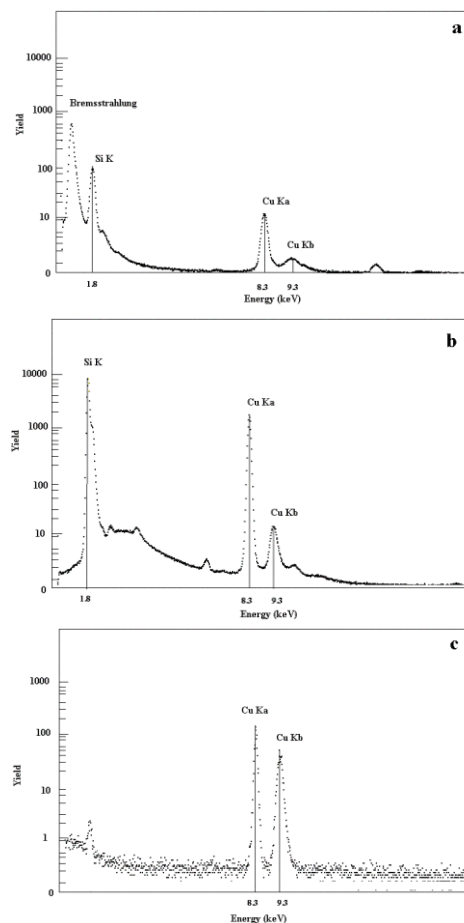


Рисунок 3. Рентгеновский спектр, полученный при облучении Cu-пленки ускоренным пучком $^{14}\text{N}^{2+}$. а) без фильтра; б) с Be-фильтром толщиной 500 мкм; в) с Al-фильтром толщиной 500 мкм

Эффективность регистрации рентгеновского излучения. Одним из параметров системы регистра-

ции рентгеновского излучения, который входит в задачу расчета сечений выхода излучения является эффективность регистрации детектора. В наших экспериментах для регистрации рентгеновского излучения использовался Si(Li)-детектор площадью 30 мм², толщиной ~ 4 мм и мертвым слоем 0.2 мкм. Паспортное разрешение детектора составляет ~145 эВ на энергии 5.9 кэВ (K_α-Mn). Для вакуумного разделения системы регистрации и мишенной камеры перед кристаллом детектора располагается защитное органическое окно толщиной ~200 нм. Для уменьшения вклада низкоэнергетичного излучения в загрузку спектрометрического тракта в наших экспериментах между облучаемой мишенью и детектором размещалась дополнительная Be или Al фольга толщиной 500 мкм. Соответственно, для каждого типа фильтра была определена эффективность регистрации излучения.

Полученные зависимости эффективностей регистрации от энергии рентгеновского излучения для Be- и Al-фильтров представлены соответственно на рисунках 4а и 4б.

Для расчета эффективностей использовались калибровочные источники ²⁴¹Am и ⁵⁵Fe. В таблице 3 представлены энергии и вероятности переходов для каждой используемой рентгеновской линии, а также активности источников.

В таблице 3 вероятность испускания соответствует количеству рентгеновских квантов данной энергии на один акт распада.

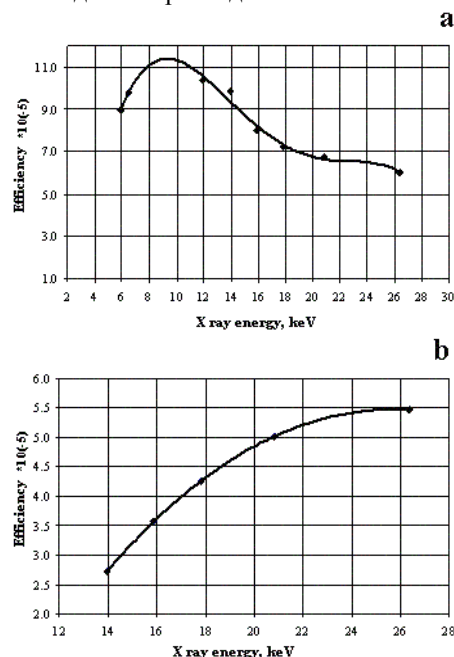


Рисунок 4. Эффективность регистрации рентгеновского излучения Si(Li)-детектором. а) с Be-фильтром толщиной 500 мкм; б) с Al-фильтром толщиной 500 мкм

Таблица 3. Характеристики калибровочных источников и используемых рентгеновских линий

Источник	Активность, кБк	Линия	Энергия, кэВ	Вероятность испускания, %
⁵⁵ Fe	30.3	Mn K _α	5.895	24.9
		Mn K _β	6.491	3.55
²⁴¹ Am	10.1	Np L _I	11.89	8.48 ± 0.01
		Np L _α	13.94	13.03 ± 0.1
		γ ₁	15.88	0.39
		Np L _{β+η}	17.81	18.86 ± 0.15
		Np L _γ	20.82	4.81 ± 0.04
		γ ₂	26.34	2.40 ± 0.03
		γ ₃	59.54	35.78 ± 0.09

С целью сохранения геометрических характеристик системы регистрации калибровочные источники устанавливались в месте положения облучаемых мишеней.

Выход флуоресценции

Ионизация. Сечение ионизации электронов внутренней оболочки атома при столкновении с ионом в основном зависит от атомного номера и скорости налетающей частицы Z_1 и v_1 соответственно и скорости электрона на внутренней оболочке атома v_2 . Налетающие частицы, такие как фотоны, электроны и протоны, как правило, образуют одиночные вакансии на внутренних оболочках. При использовании тяжелых ионов ($Z_1 > 2$) существует значительная вероятность, что ионизация внутренней оболочки будет сопровождаться выбиванием дополнительных электронов, покидающих многократно ионизованный атом мишени. Так как отсутствие электронов уменьшает экраниро-

вание ядерного заряда для оставшихся электронов, их энергия ионизации увеличивается.

Вакансии на внутренних оболочках могут быть произведены различными механизмами, в зависимости от значений параметров столкновения, характеризующих процесс ионизации. Непосредственное кулоновское возбуждение (DE) или ионизация (DI) преобладает для малых Z_1 и больших Z_2 . Когда Z_1 становится сравнимым с Z_2 и в случае, если v_1 меньше орбитальной скорости выбиваемого электрона v_2 , квантовое электронное состояние адиабатически перестраивается при достижении налетающей частицей ядра мишени и формирует молекулярные орбитали, из которых эмитируются электроны. Появляющиеся вакансии относятся к K-оболочкам налетающего иона или атома мишени или перераспределяются между двумя K-оболочками в соответствии с имеющейся асимметрией между сталкивающимися

партнерами. Это явление известно как механизм ионизации в модели молекулярных орбиталей. Вакансии на внутренних оболочках могут также образовываться посредством перехода электрона атома мишени на разрешенный уровень налетающей частицы. Этот процесс наиболее вероятен при скорости электрона в первоначальном состоянии, сравнимой с его конечной скоростью.

Снятие возбуждения. Вакансия внутренней оболочки с наибольшей вероятностью заполняется электроном с верхней оболочки или подоболочки, что приводит к испусканию рентгеновского кванта или оже-электрона. Разница между полной энергией атома в первоначальном и конечном состояниях определяет энергию испускаемой частицы. Эти два процесса являются конкурирующими, но не равновероятными. Вероятность, что вакансия будет заполнена с испусканием рентгеновского кванта, известна как выход флуоресценции. Два процесса заполнения вакансии показаны на рисунке 5. Оже-переход является специальным случаем нерadiационного перехода, в котором испускаемый электрон удаляется из более верхней оболочки, чем электрон, заполняющий внутреннюю вакансию.

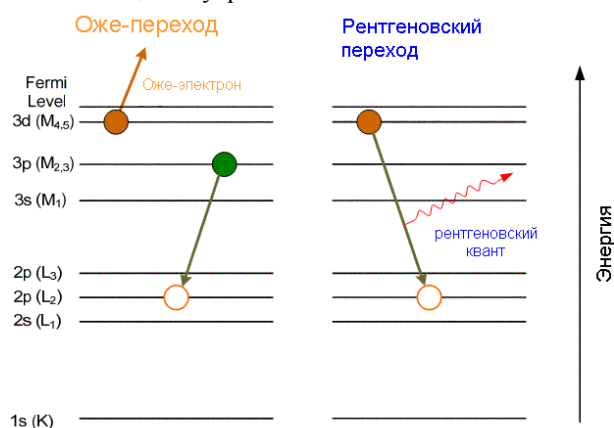


Рисунок 5. Примеры конкурирующих переходов при заполнении внутренней вакансии атома мишени

Нерadiационные переходы преобладают, если энергия перехода невелика, в то время как испускание рентгеновского излучения доминирует при большой энергии перехода.

Разрешенные рентгеновские переходы определяются правилами дипольного отбора ($\Delta S = 0$, $\Delta l = \pm 1$, $\Delta L = 0, \pm 1$, $\Delta J = 0, \pm 1$). Неразрешенные переходы имеют гораздо меньшую вероятность. Разрешенные переходы для K - и L -оболочек одно-вакансионного атома показаны на рисунке 6. Их энергии переходов табулированы Bearden [109, 110], Porter [111], Sevier [112], Deslatters [113].

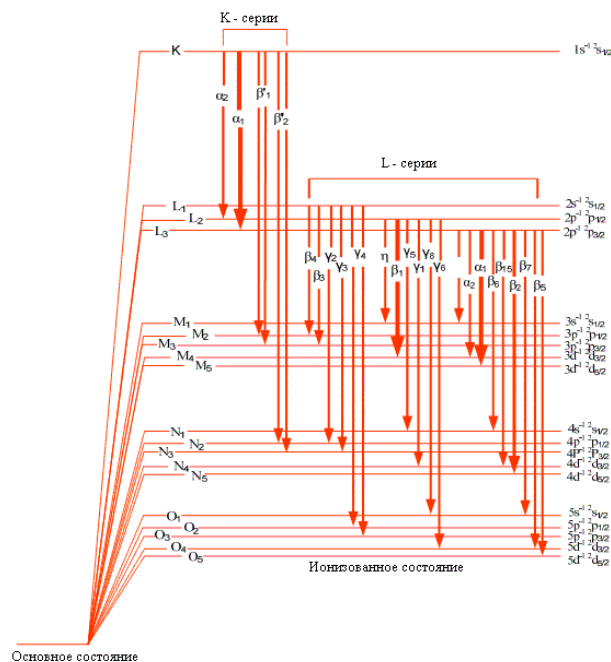


Рисунок 6. Диаграмма энергетических уровней

Рентгеновские спектры, испускаемые многократноионизованными атомами, являются более сложными по сравнению с однократноионизованными спектрами. К примеру, в спектрах K -линий при многократной ионизации тяжелыми ионами доминируют серии сателлитных линий, испускаемых при одной K -вакансии и одной или нескольких L -вакансиях атома мишени, и, кроме того, присутствуют гиперсателлитные пики, возникающие при двух K -вакансиях и одной или нескольких L -вакансиях атома мишени. Сателлитные и гиперсателлитные серии обозначаются KL^n и K^2L^n соответственно. На рисунке 7 показаны разрешенные переходы для $K\alpha$ сателлитов при условии отсутствия вакансий на внешних оболочках.

Вероятности переходов. Естественный энергетический профиль электронного уровня может быть описан функцией Лоренца. Энергетический профиль радиационного перехода тоже может быть описан распределением Лоренца, в котором полная ширина на полувысоте (FWHM) определяется энергетическими ширинами двух состояний. Вероятность перехода в единицу времени S_{if}^x из первоначального состояния i в конечное состояние f задается выражением:

$$S_{if}^x = \frac{\Gamma_{if}^x}{\hbar},$$

где Γ_{if}^x – ширина на полувысоте радиационного перехода и $\hbar$ – постоянная Планка. Вероятность перехода S_{if}^x также зависит от силы связи и возможных путей перехода (т.е. плотности конечных состояний).

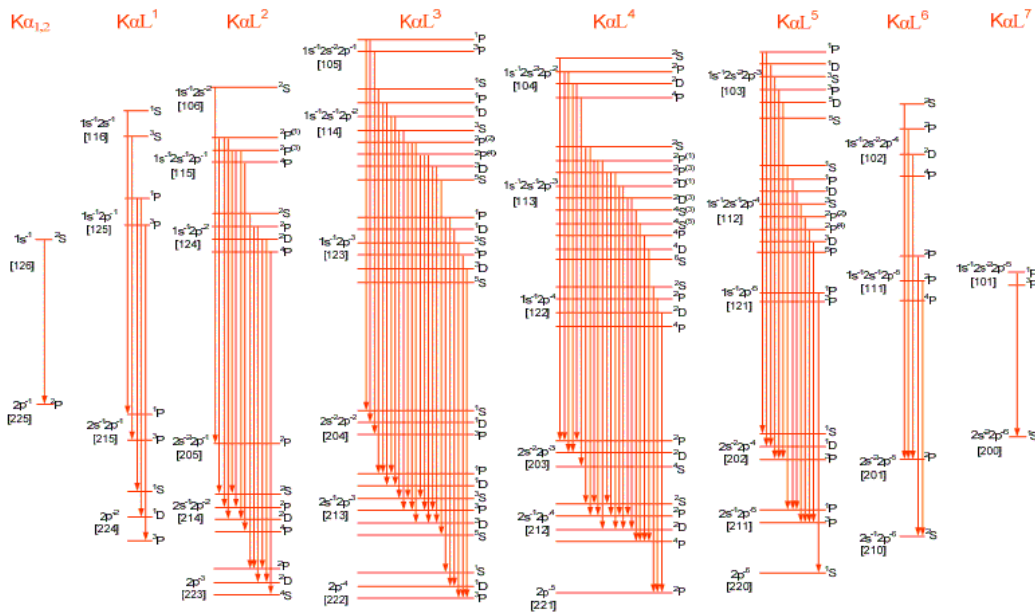


Рисунок 7. Разрешенные $K\alpha$ -рентгеновские переходы в одно- и многократно ионизованных атомах. Вакансии на внешних оболочках (M -оболочка и выше) не учитываются. $K\alpha L^n$ -переходы с L - на K -оболочку при n вакансиях на L -оболочке и одной вакансии на K -оболочке в исходном состоянии

Предполагая, что разные переходы в исходном состоянии являются независимыми, полная вероятность перехода S определяется суммой всех возможных переходов:

$$S = S_R + S_{NR},$$

где $S_R = \frac{\Gamma_R}{\hbar}$ и $S_{NR} = \frac{\Gamma_{NR}}{\hbar}$ – вероятности радиационных и нерадационных переходов соответственно, а Γ_R и Γ_{NR} – соответствующие FWHM. Полная ширина задается выражением: $\Gamma = \Gamma_R + \Gamma_{NR}$. Теоретические природные ширины для K -оболочки как функции атомного номера показаны на рисунке 7 [114]. Как следует из рисунка 8, оже-процессы доминируют для легких атомов, в то время как радиационные переходы – для тяжелых.

Выход флуоресценции. Выход флуоресценции K -оболочки ω_K задается выражением:

$$\omega_K = \frac{\Gamma_R^K}{\Gamma^K},$$

где Γ_R^K и Γ^K – радиационная и полная вероятности соответственно всех переходов, заполняющих K -оболочку. Таким образом, число испускаемых рентгеновских K -квантов равно $\omega_K n_K$, где n_K – число K -вакансий, образованных в процессе возбуждения.

Одновакансионный выход флуоресценции с K -оболочки. Рисунок 9 [114] показывает теоретический выход флуоресценции K -оболочки как функцию атомного номера элемента.

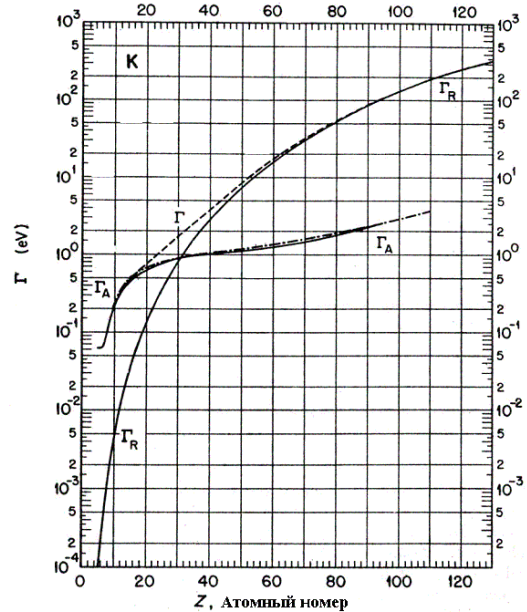


Рисунок 8. Теоретические ширины уровней для атомных K -оболочек как функция атомного номера

Теоретические значения ω_K в диапазоне атомных номеров $4 \leq Z \leq 54$ были получены McGuire [115, 116] и Walters et al. [117–119] с использованием волновых функций из метода Hartree-Fock-Stater. Chen et al. [147] использовали подход Dirac-Hartree-Stater для определения величин ω_K для элементов в диапазоне атомных номеров $18 \leq Z \leq 96$. Kostroun [120] и Crasemann [121] представили расчет ω_K с $10 \leq Z \leq 70$. Другие расчеты одновакансионных выходов флуоресценции K -оболочки описаны в ссылках [122–130].

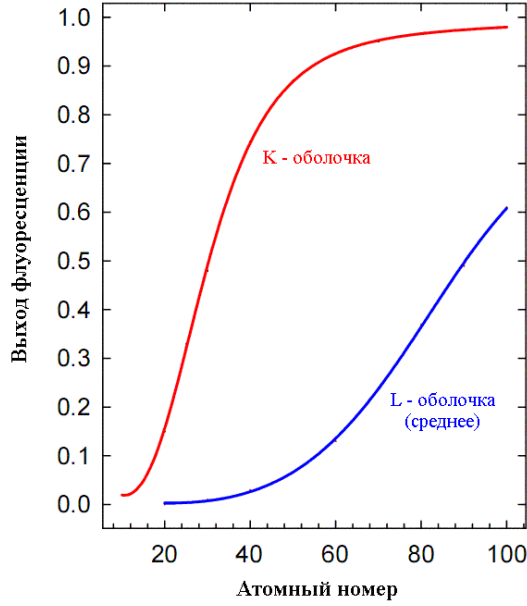


Рисунок 9. Теоретический одновакансионный выход флуоресценции для K- и L-оболочек. Кривая для L-оболочки представляет средние выходы линий L_1 , L_2 и L_3

Основываясь на экспериментальных значениях ω_K как функции атомного номера мишени, было предложено несколько полуэмпирических выражений для расчета выхода флуоресценции K-оболочки [1, 122, 131].

Burhop [131] уточнил полуэмпирическое выражение:

$$\frac{\omega_K}{(1-\omega_K)} = (-0.217 + 0.03318 \cdot Z - 1.14 \cdot 10^{-6} \cdot Z^3)^4.$$

Bambynek et al. [122] заново обработали экспериментальные значения ω_K и построили аппроксимацию по наиболее надежным значениям ω_K :

$$\frac{\omega_K}{(1-\omega_K)} = [(0.015 \pm 0.010) + (3.27 \pm 0.05) \cdot 10^{-2} \cdot Z - (0.64 \pm 0.071) \cdot 10^{-6} \cdot Z^3]^4.$$

Langenberg [131] использовал семь параметров подгонки в широком диапазоне экспериментальных выходов флуоресценции:

$$\begin{aligned} \frac{\omega_K}{(1-\omega_K)} = & [(-0.0205 \pm 0.014) + (4.75 \pm 0.35) \times \\ & \times 10^{-2} \cdot Z - (16 \pm 3) \cdot 10^{-4} \cdot Z^2 + \\ & + (70 \pm 14) \cdot 10^{-6} \cdot Z^3 - (145 \pm 30) \cdot 10^{-8} \cdot Z^4 + \\ & + (135 \pm 30) \cdot 10^{-10} \cdot Z^5 - (46 \pm 12) \cdot 10^{-12} \cdot Z^6]^4. \end{aligned}$$

Hanke et al. получили выражение для элементов от Mg до Zr:

$$\begin{aligned} \frac{\omega_K}{(1-\omega_K)} = & 0.3704 - 6.0447 \cdot 10^{-2} Z + \\ & + 3.1331 \cdot 10^{-3} Z^2 - 3.9215 \cdot 10^{-5} Z^3. \end{aligned}$$

Hubbel et al. [1] комбинацией теоретических и экспериментальных данных получили следующее аналитическое выражение:

$$\omega_K (1 \leq Z \leq 100) = \left[\sum_{i=0}^3 C_i Z^i \right]^4 \left\{ 1 + \left[\sum_{i=0}^3 C_i Z^i \right]^4 \right\}^{-1},$$

где $C_0 = 0.0370 \pm 0.0052$, $C_1 = 0.03112 \pm 0.00044$, $C_2 = (5.44 \pm 0.11) \cdot 10^{-5}$, $C_3 = -(1.25 \pm 0.07) \cdot 10^{-6}$.

Сравнение этих полуэмпирических расчетов в зависимости от атомного номера показано на рисунке 10.

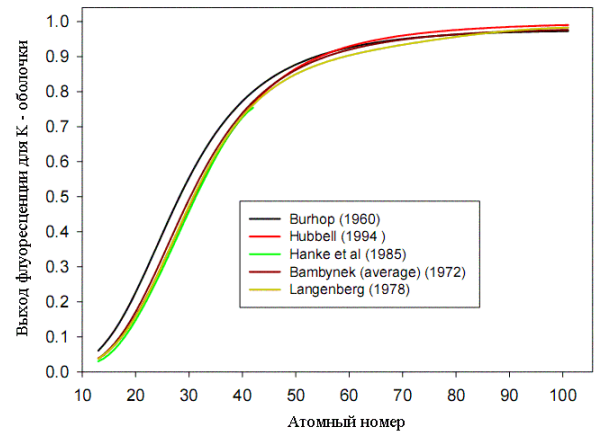


Рисунок 10. Сравнение ω_K для разных аппроксимаций

Многовакансионный выход флуоресценции.

Многочисленные вакансии на K-, L- и внешних оболочках влияют на вероятности радиационных и нерadiационных переходов, уменьшая число электронов, доступных для этих переходов, делая некоторые нерadiационные переходы энергетически запрещенными и модифицируя атомные волновые функции в исходном и конечном состояниях. Поэтому выход флуоресценции многократно ионизованного атома существенно отличается от выхода для однократно ионизованного атома.

Для получения сечения образования K-вакансий из сечения выхода флуоресценции нужно знать описание конфигурации вакансий в исходном и конечном состояниях и соответствующие вероятности переходов. Надежные данные для многократно ионизованных атомов в настоящее время отсутствуют.

До настоящего времени расчеты многовакансионного выхода флуоресценции для ограниченного числа переходов проведены Watson [133], Anagnostopoulos [134, 135], Polasik et al. [136], Pajek et al. [137], Horvat et al. [138], Kobal [139], Kadhane et al. [140].

Horvat et al. [138] разработали метод для получения исходного распределения L -вакансий, среднего числа M -вакансий во время столкновения и эффективного выхода флуоресценции с K -оболочки. Метод основывается на измерении рентгеновских спектров на спектрометре с волновой дисперсией с учетом многошаговой перестройки исходных электронных конфигураций из-за разрешенных и неразрешенных переходов, происходящей между столкновением и излучением рентгеновских квантов. Используемые шаги можно описать следующей последовательностью действий:

1. Исходное распределение электронной конфигурации (образованное во время столкновения) оценивается из спектра, при этом предполагается биномиальное распределение L -вакансий [52, 53], характеризующее средней вероятностью ионизации на электрон p_L^0 . Распределение L -электронов по L -подуровням (L_1 , L_2 и L_3) подчиняется статистическому закону, а в распределении электронов на M -оболочке предпочтительными являются $3p$ -орбитали. В исследованиях предполагалось, что электроны на N -оболочке и выше отсутствуют. Исходное среднее число L -электронов n_L и M -электронов n_M оценивалось по формуле, предложенной Sulik et al. [92]. Вероятности переходов для многократноионизованных атомов выводилось из одновакансионных вероятностей переходов с использованием пересчетных процедур, предложенных Larkins [141].

2. Последующая обработка каждой конфигурации производится отдельно до состояния, при котором переходы отсутствуют. Список рентгеновских K -переходов включает информацию, необходимую для определения относительных интенсивностей K_α и K_β сателлитных пиков, числа M -вакансий, связанных с каждым из них и, что наиболее важно, средний выход флуоресценции.

3. После сравнения предсказанных и измеренных рентгеновских спектров предполагаемое исходное распределение конфигураций модифицируется, и вычисления повторяются до удовлетворительного согласования между двумя спектрами.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЯ

Особенности рентгеновских спектров. Характеристические рентгеновские линии NPIXE при регистрации рентгеновских квантов энергодисперсионным детектором (рисунок 3) имеют энергетическое смещение и уширение по сравнению с классическими рентгенофлуоресцентными линиями.

Причины этого явления объясняют спектры, показанные на рисунке 11, взятые из работы [58].

На рисунке 11а представлен типичный спектр K -линий Cu , полученный на спектрометре с волновой дисперсией при облучении медной мишени пучком Xe с энергией 20 МэВ/нуклон.

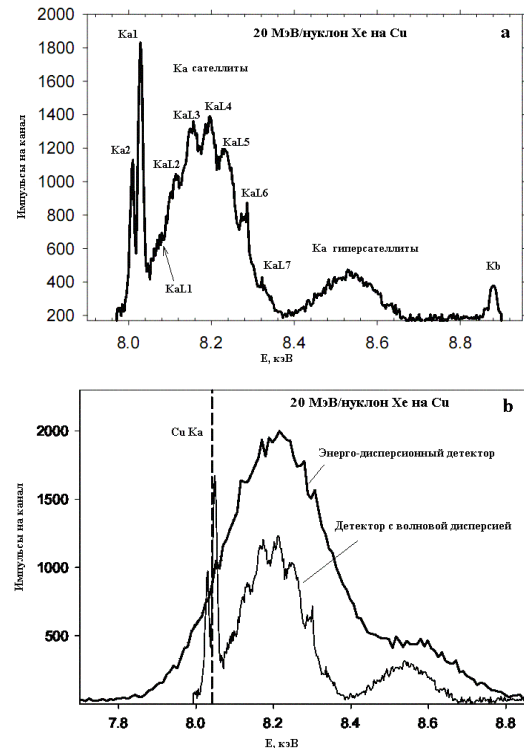


Рисунок 11. Спектры K -линий Cu при облучении медной мишени пучком Xe 20 МэВ/нуклон: а) с высоким разрешением; б) сравнение спектров, полученных с помощью спектрометров с высоким (спектрометр с волновой дисперсией) и низким (энергодисперсионный спектрометр) разрешением.

В спектре рисунка 11а присутствуют два интенсивных низкоэнергетических пика, отмеченных как $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$ и происходящих из одновакансионных первоначальных состояний. Пики, отмеченные как $K_{\alpha} L^n$ ($n = 1, 2, \dots, 7$), известны как K_{α} -сателлиты. Они появляются вследствие K_{α} -рентгеновских переходов в атомах, имеющих K -вакансию плюс несколько L -вакансий. Как было обнаружено, распределение интенсивности между K_{α} -сателлитными пиками близко к биномиальному распределению [142]. Так как на L -оболочке может находиться не более восьми электронов, количество K_{α} -сателлитных пиков также не превышает 8. Однако $K_{\alpha} L^0$ является очень слабым и виден не отчетливо на фоне других интенсивных пиков, в то же время пик $K_{\alpha} L^8$ не существует, так как для K_{α} -перехода нужен хотя бы один электрон на L -оболочке.

Пики справа от K_{α} -сателлитов называются гиперсателлитами. Они являются следствием K_{α} -переходов в атомах, имеющих в исходном состоянии две K -вакансии плюс L -вакансии, и имеют структуру, схожую с K_{α} -сателлитами, но с меньшими интенсивностями.

Пик, расположенный на рисунке 11а справа и отмеченный как K_{β} , является следствием переходов с M -оболочки на K -оболочку. Структура K_{β} -сателлитов и гиперсателлитов, не показанных на рисунке,

схожа с соответствующими наборами для K_{α} -переходов. Сателлиты K_{β} и гиперсателлиты имеют большую энергию, чем пик K_{β} .

Для K_{α} - и K_{β} -пиков меди, полученных с помощью энергодисперсионного Si(Li)-детектора с разрешением 145 эВ, тонкая структура практически не разрешается. Присутствие гиперсателлитов слабо проявляется в виде затянутого хвоста (K_{α} -серия) или слабо выраженного высокоэнергетичного пика (K_{β} -серия).

На рисунке 11b показано сравнение K_{α} -спектров Cu, полученных при облучении медной мишени пучком Xe с энергией 20 МэВ/нуклон с помощью спектрометров высокого и низкого разрешения. Пунктирная линия показывает положение средней энергии линий $K_{\alpha 1}$ и $K_{\alpha 2}$. Из рисунка видна трансформация спектра в зависимости от измерения его на спектрометре с волновой дисперсией или энергодисперсионном анализаторе. При увеличении атомного номера Z_1 налетающего иона повышается степень многократной ионизации L - и M -оболочек. Это приводит к расширению сателлитных пиков и смещению их центра тяжести в область более высоких энергий.

Смещения и уширения. С практической точки зрения при использовании HIPHE с энергодисперсионным детектором для анализа содержаний элементов в образцах с целью корректной обработки спектрометрической информации важно знать параметры отдельных линий характеристического излучения: ширину на полувысоте (FWHM) и смещение центров тяжести пиков (ΔE) по отношению к табличным значениям энергий одноэлектронной ионизации для разных типов и энергий налетающих ионов. На рисунках 12 и 13 представлены эти характеристики для линий K_{α} исследованных образцов и налетающих частиц.

Обработка спектрометрической информации. Обработка накопленных спектров осуществлялась с использованием специально разработанного программного обеспечения. Необходимость такого подхода объясняется наличием в некоторых случаях сильно перекрывающихся рентгеновских пиков, соответствующих как материалу образца, так и налетающим частицам.

Пример такого наложения пиков показан на рисунке 14a.

В основе алгоритма программы лежит подгонка методом наименьших квадратов рентгеновского спектра набором гауссовских функций, описывающих энергетическое распределение рентгеновской флуоресценции. Описание и примеры использования программного обеспечения можно найти в ссылке [143].

Для корректного описания каждого из наложенных пиков в качестве исходной информации использовалось описание этих же пиков в условиях отсутствия наложений (линия Ge K_{β} описывалась из спектра, полученного при возбуждении ионом $^{14}\text{N}^{2+}$, а линия Kr K_{β} – при возбуждении титана пучком $^{84}\text{Kr}^{13+}$).

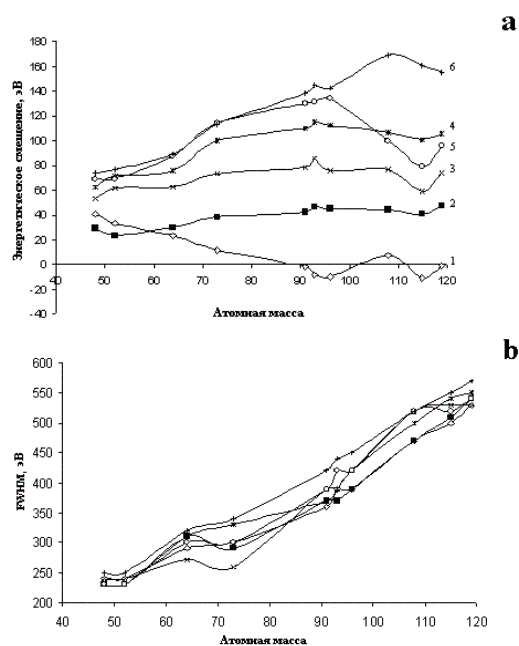


Рисунок 12. Смещения (а) и уширения (б) рентгеновских линий мишеней для разных типов и энергий налетающих частиц. На рисунке 4a: 1 – N^{2+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 2 – N^{2+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 3 – Ar^{6+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 4 – Ar^{6+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 5 – Kr^{13+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 6 – Kr^{13+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон

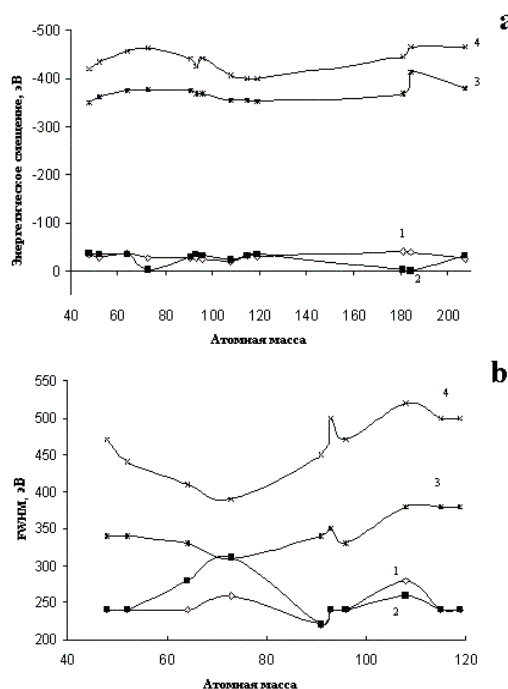


Рисунок 13. Смещения (а) и уширения (б) рентгеновских линий налетающих частиц. На рисунках: 1 – Ar^{6+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 2 – Ar^{6+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 3 – Kr^{13+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 4 – Kr^{13+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон

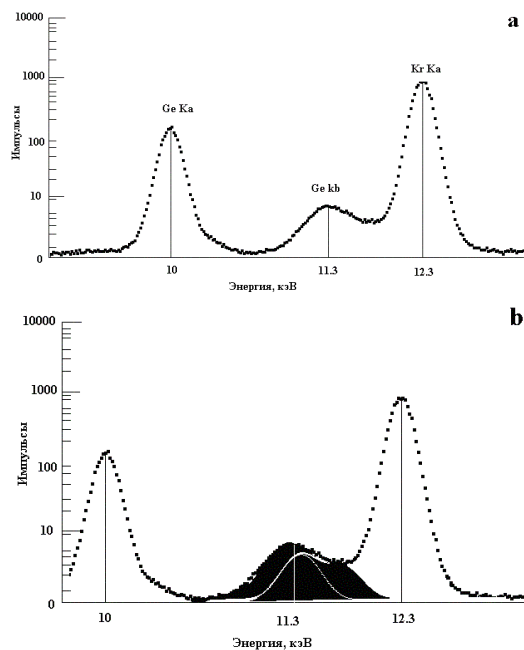


Рисунок 14. Пример наложения рентгеновских $\text{Ge } K_{\beta}$ - и $\text{Kr } K_{\alpha}$ -пиков (а), и их программного описания (б)

Пример описания наложенных пиков показан на рисунке 14б. Так как линия K_{β} германия имеет ярко выраженную негауссовскую форму (затянутый высокоэнергетичный хвост), она описана тремя гауссианами.

Сечения выхода рентгеновского излучения. Для расчета сечений выхода флуоресценции использовалось следующее выражение:

$$\sigma = \frac{N_x M \cos(\vartheta)}{d \varepsilon N_p N_0},$$

где N_x – число зарегистрированных рентгеновских квантов, M (г/моль) – атомная масса мишени, ϑ – угол между направлением движения пучка и нормалью к мишени, d – толщина мишени (г/см²), ε – эффективность регистрации рентгеновского излучения, N_p – число заряженных частиц, упавших на образец за время набора рентгеновского спектра, N_0 (моль⁻¹) – число Авогадро.

Основными источниками погрешностей в экспериментах были: погрешность определения эффективности регистрации, погрешность измерения интеграла тока, погрешность измерения толщины напыленных пленок, погрешность определения числа зарегистрированных рентгеновских квантов. Относительная погрешность сечения определяется как квадратный корень из суммы квадратов относительных погрешностей каждого из этих параметров.

На рисунке 15 в графическом виде показаны зависимости сечений выхода K_{α} -флуоресценции от атомного номера мишени для разных налетающих частиц и энергий.

Как уже указывалось выше, очень немного опубликовано статей, в которых описано систематическое изучение сечений выхода флуоресценции. При этом большинство авторов использовали в своих исследованиях ускоренные ионы с энергией больше 2.5 МэВ/нуклон. Это затрудняет сравнение полученных нами данных с данными других лабораторий. На рисунке 8 показаны наши результаты для ускоренных пучков Ar и Kr с энергиями 1 МэВ/нуклон и 1.4 МэВ/нуклон и данные, представленные в работе [58] для этих же типов частиц в диапазоне энергий 2.5 – 25 МэВ/нуклон. Рисунок 16 демонстрируют схожесть тенденций кривых, описывающих зависимость сечения выхода флуоресценции от атомного номера мишени, полученных в разных лабораториях.

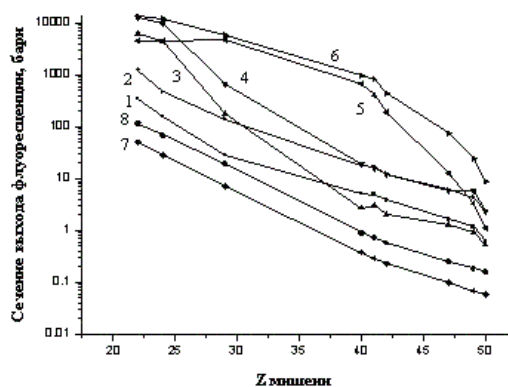


Рисунок 15. Сечения выхода K_{α} -флуоресценции мишеней для разных налетающих частиц и энергий. На рисунке: 1 – N^{2+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 2 – N^{2+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 3 – Ar^{6+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 4 – Ar^{6+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 5 – Kr^{13+} , $E = 1$ МэВ/нуклон; 6 – Kr^{13+} , $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 7 – p^+ , $E = 1$ МэВ/нуклон [144–146]; 8 – p^+ , $E = 1.4$ МэВ/нуклон [144–146]

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты экспериментов по выходу характеристического рентгеновского излучения из атомов мишени при бомбардировке их пучками ионов азота, аргона и криптона с энергиями в 1 и 1.4 МэВ/нуклон показывают ожидаемо высокие сечения выходов флуоресценции и могут служить основанием для постановки методик определения элементного состава образцов с использованием NPIXE. В дальнейшем предполагается продолжение исследовательских работ по измерению сечений с расширением диапазона энергий и типов налетающих частиц.

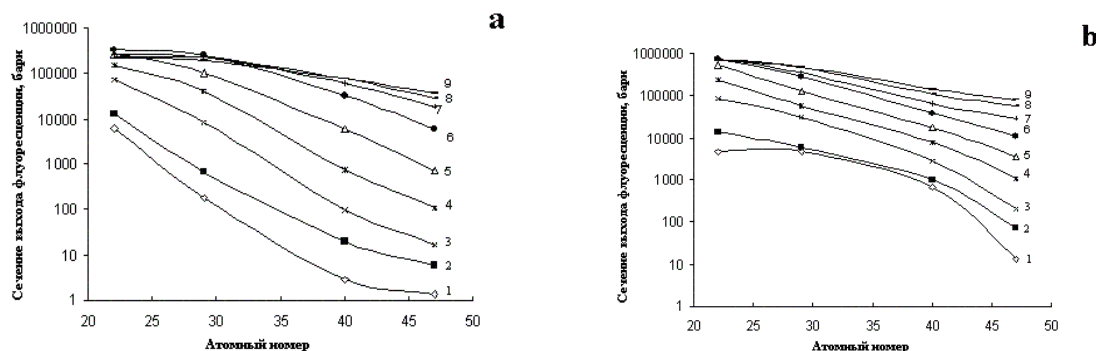


Рисунок 16. Сечения выхода $K\alpha$ -флуоресценции мишеней для пучков Ar^{6+} (a) и Kr^{13+} (b) разной энергии. На рисунках: 1 – $E = 1$ МэВ/нуклон; 2 – $E = 1.4$ МэВ/нуклон; 3 – $E = 2.5$ МэВ/нуклон; 4 – $E = 4$ МэВ/нуклон; 5 – $E = 6$ МэВ/нуклон; 6 – $E = 10$ МэВ/нуклон; 7 – $E = 15$ МэВ/нуклон; 8 – $E = 20$ МэВ/нуклон; 8 – $E = 25$ МэВ/нуклон. Значения сечений для энергий 1 и 1.4 МэВ/нуклон – представленная работа; значения сечений для энергий 2.5 ÷ 25 МэВ/нуклон приведены в ссылке [58]

ЛИТЕРАТУРА

1. A Review, Bibliography, and Tabulation of K, L, and Higher Atomic Shell X-Ray Fluorescence Yields / J. H. Hubbell, P. N. Trehan, N. Singh, B. Chand, D. Mehta, M. L. Garg, R. R. Garg, S. Singh, and S. Puri // J. Phys. Chem. Ref. Data – 1994 – 23(2) – P. 339.
2. Charge Exchange and the Theory of Ion-Atom Collisions / H. H. Bransden and M. R. C. McDowell. - Clarendon Press, Oxford, 1992.
3. Atomic and Molecular Processes in Fusion Edge Plasmas / R. K. Janev. - Plenum, New York, 1995.
4. Inertial Confinement Fusion / J. D. Lindl. - Springer, New York, 1998.
5. M-subshell ionization in near-central collisions of 20-MeV/amu carbon ions with molybdenum atoms / M-subshell ionization in near-central collisions of 20-MeV/amu carbon ions with molybdenum atoms / J. Rzaekiewicz, D. Chmielewska, A. Gójska, Z. Sujkowski, M. Berset, J.-Cl. Dousse, Y.-P. Maillard, O. Mauron, P.-A. Raboud, M. Polasik, J. Horszowska and M. Pajek // NIM – 2003 – Vol. 205, P. 128-132.
6. High-resolution study of the $K\beta_2$ x-ray spectra of mid-Z atoms bombarded with 20-MeV/amu ^{12}C ions / Z. Sujkowski, J.-Cl. Dousse, D. Castella, D. Corminboeuf, J. Horszowska†, P.-A. Raboud, M. Polasik, K. Słabkowska and M. Pajek // Phys. Rev. – 2003- - A 68, 032713.
7. Inner-shell ionization by heavy charged particles / S. Morita and M. Kamiya // Chinese Journal of Physics – 1977 - V.15 – P. 199-221.
8. Ионизационные эффекты во внутренних электронных оболочках ионизированных атомов / Г. Щорняк // ЭЧАЯ – 1984 - Т.14, вып. 4. - С. 835-899.
9. Справочник по ядерной физике / О.Ф. Немец, Ю.В. Гофман - Наукова Думка, Киев, 1975 – С. 416.
10. Production of Carbon Characteristic X Rays by Heavy-Ion Bombardment / R. C. Der, T. M. Kavanagh, J. M. Khan, B. P. Curry, and R. J. Fortner // Phys. Rev. Lett. – 1968 – 21 – P. 1731 – 1732.
11. Interpretation of Ar^+-Ar Collisions at 50 keV / U. Fano and W. Lichten. // Phys. Rev. Lett. – 1965 – 14 – P. 627-629.
12. Target Z Dependence of Projectile $K\alpha$ X-Ray Production Cross Sections in High-Energy, Heavy-Ion-Atom Collisions. H. Kubo, F. C. Jundt, and K. H. Purser // Phys. Rev. Lett.- 1973 – 31 – P. 674-677.
13. Measurements of Inelastic Energy Loss in Single Atomic Collisions of Kr^+ on Kr at keV Energies and Large Scattering Angles. B. Fastrup and G. Hermann // Phys. Rev. – 1971 - A 3 – P. 1955-1958.
14. Radiative Transitions between Quasimolecular Levels During Energetic Atom-Atom Collisions / F.W. Saris, W.F. van der Weg, H. Tawara and R. Laubert. // Phys. Rev. Lett. – 1972 – 28 – P. 717-720.
15. X Rays from Superheavy Quasiatoms Transiently Formed during Heavy-Ion—Atom Collisions / P.H. Molker, H.J. Stein, and P. Armbruster // Phys. Rev. Lett. - 1972 – 29 – P. 827-830.
16. Multiple Ionization Effects in X-Ray Emission Induced by heavy ions / M. Czarnota, M. Pajek, D. Banás, J.-Cl. Dousse, Y.-P. Maillard, O. Mauron, P. A. Raboud, M. Berset, D. Chmielewska, J. Rzaekiewicz, Z. Sujkowski, J. Horszowska, K. Słabkowska, M. Polasik // Brazilian Journal of Physics – 2006 – Vol. 36, № 02B – P. 546 - 549.
17. Cross Sections for K-Shell Ionization by Light Ions / H. Paul and J. Muhr // Physics Reports – 1986 – 135 – P. 47.
18. Universal Cross Sections for K-Shell Ionization by Heavy Charged Particles. I. Low Particle Velocities / G. Basbas, W. Brandt, and R. Laubert // Phys. Rev. – 1973 - A 7 – P. 983 - 1001.
19. Binding and Coulomb – deflection effects in L-shell Coulomb ionization by heavy charged particles. Low particle velocities / W. Brandt and G. Lapicki // Phys. Rev. – 1974 - A 10 – P. 474 - 483.
20. Universal cross-sections for K-shell ionization by heavy charged particles. II. Intermediate particle velocities / G. Basbas, W. Brandt, and R. Laubert // Phys. Rev. – 1978 - A 17 – P. 1655.
21. L-shell Coulomb ionization by heavy charged particles / W. Brandt and G. Lapicki // Phys. Rev. – 1979 - A 20- P. 465 - 480.
22. Energy-loss effect in inner-shell Coulomb ionization by heavy charged particles / W. Brandt and G. Lapicki // Phys. Rev. – 1981 - A 23 – P. 1717 - 1729.
23. Perturbed-stationary-state theory of atomic inner-shell ionization by heavy charged particles / G. Basbas, W. Brandt, and R. H. Ritchie // Phys. Rev. – 1973 - A 7 – 1971 - 1976.
24. Monopole Coulomb- deflection factor for heavy-particle inner-shell-ionization cross-sections / G. Lapicki, M. Goldstein and W. Brandt // Phys. Rev. – 1981 - A 23 – P. 2727 - 2729.

25. Coulomb-deflection effect in inner-shell ionization by heavy charged particles // G. Lapicki, R. Laubert, and W. Brandt // Phys. Rev. – 1980 - A 22 – P. 1889 -1995.
26. Recoil effects on molecular-orbital X-ray spectra in solid targets / W. E. Meyerhof and R. Anholt, // J. Phys. - 1979 - B 12 – P. 3919 - 3934.
27. K-vacancy production in heavy-ion collisions. IV. K-L level matching / W. E., R. Anholt, J. Eichler and A. Salop / 1978 - Phys. Rev. - A 17 – P. 108 - 119.
28. K-vacancy production in heavy – ion collisions. II. Multiple and single – collision excitation in the $2p\sigma$ molecular orbital / W. E. Meyerhof, R. Anholt and T. Saylor / Phys. Rev. – 1977 - A 16 P. 169 -189.
29. K-vacancy production in heavy – ion collisions. II. $1s\sigma$ excitation / R. Anholt and W. Meyerhof // Phys. Rev. – 1977 - A 16 – P. 190 - 208.
30. K-vacancy production in heavy-ion collisions. I. Experimental results for $Z \geq 35$ projectiles / W. E. Meyerhof, R. Anholt, T. K. Saylor, S. M. Lazarus, A. Little and L. F. Chase // Phys. Rev. – 1976 - A 14 – P. 1653 - 1661.
31. K-vacancy production in heavy-ion collisions / R. Anholt, W. Meyerhof and A. Salin // Bull. Amer. Phys. Soc. – 1976 – 21 – P. 1301.
32. Molecular-orbital K x-ray formation in heavy-ion collisions / W. E. Meyerhof, T. Saylor, S. Lazarus, A. Little, B. Triplett, L. Chase and R. Anholt // Phys. Rev. Lett. – 1974 – Vol. 32 – P. 1279 - 1282.
33. Molecular-orbital K x-ray formation in heavy-ion collisions / R. Anholt and W. Meyerhof // Bull. Amer. Phys. Soc – 1974 – 19 – P. 592.
34. An atomic multiconfiguration Dirac—Fock package / I. P. Grant, B. J. Mckenzie, P. H. Norrington, D. F. Mayers, and N. C. Pyper // Comp. Phys. Comm. - 1980 - 21 - 207 - 231.
35. Inner-Shell Excitation in Hetero-Nuclear Collisions: I. Orbitals and Couplings in Molecular Basis / K. Taulbjerg and J. S. Briggs // J. Phys – 1975 - B 8 - 1895.
36. Correlation diagrams for asymmetric atom-atom collisions / M. Barat and W. Lichten // Phys. Rev. – 1972 - A 6 – P. 211 - 234.
37. Atomic collisions with relativistic, heavy ions-targets inner-shell ionization / R. Anholt, W. E. Meyerhof, C. Stoller, E. Morenzoni, S. A. Andriamonje, J. Molitoris, O. Baker, D. Hoffmann, H. Bowman, J. S. Xu, Z. Xu, K. Frankel, D. Murphy, and K. Crowe // Phys. Rev. – 1984 - A 30 - 2234 – 2244.
38. Atomic collisions with relativistic, heavy ions 2. Light-ion charge states / R. Anholt // Phys. Rev. – 1985 - A 31 – 3579 - 3592.
39. Atomic collisions with relativistic heavy ions. IV. Projectile K-shell ionization / R. Anholt, W. Meyerhof, H. Gould, C. Munger, J. Alonso, P. Thieberger and H. Wegner // Phys. Rev. – 1985 - A 32 – P. 3302-3309.
40. Atomic collisions with relativistic heavy ions. III. Electron capture / W. E. Meyerhof, // Phys. Rev. - 1985 – A 32 – P. 3291 - 3301.
41. Atomic collisions with relativistic heavy ions. V. The states of ions in matter / R. Anholt and W. Meyerhof / Phys. Rev. – 1986 - A 33 – P. 1556 -1568 (1986).
42. Atomic collisions with relativistic heavy ions. VI. Radiative processes / R. Anholt, C. Stoller, J. Molitoris, D. Spooner, E. Morenzoni, S. Andriamonje, W. Meyerhof, H. Bowman, J. Xu, Z. Xu, J. Rasmussen and D. Hoffmann // Phys. Rev. – 1986 - A 33 – P. 2270 - 2280.
43. Atomic collisions with relativistic heavy ions. VIII. Charge-state studies of relativistic uranium ions / R. Anholt, W. E. Meyerhof, X. Xu, H. Gould, B. Feinberg, R. McDonald, H. Wegner, and P. Thieberger // Phys. Rev. – 1987 - A 36 – P. 1586 -1600.
44. Multiple ionization in relativistic heavy-ion–atom collisions / W. E. Meyerhof, R. Anholt and X. Y. Xu, // Phys. Rev. – 1987 - A 35 – P. 1966 - 1970.
45. Calculation of K-vacancy production by relativistic projectiles / R. Anholt // Phys. Rev. – 1979 - A 19 – P. 1004 - 1010.
46. E. Liatard, J. F. Bruandet, F. Glasser, and T. U. Chan, Z. Phys. D 2, 223 (1986).
47. K-shell ionization of intermediate-Z elements by 30-MeV/amu H, N, He and Ar ions /V. Horvat, G. Sampoll, K. Wohrer, M. Chabot and R. Watson // Phys. Rev. – 1992 - Vol. 46 №5 – P.2572 - 2580.
48. Inner-shell vacancy distribution in energetic Ar ions by penetration in solids / Y. Zou, Y. Awaya, C. P. Bhalla, T. Kambara, Y. Kanai, M. Oura, Y. Nakai, K. Ando, A. Hitachi and S. Kravis // Phys. Rev. -1995 – 51 – P. 3790 - 3798.
49. K- and L-shell ionization of heavy targets by various 20- and 80-MeV/u projectiles / V. Kravchuk, A. Van Den Berg, F. Fleurot, M. De Huu, H. Lohner, H. Wilschut, M. Polasik, M. Lewandowska-Robak and K. Slabkowska // Phys. Rev. – 2001 - A 64 – P. 062710-1 – 062710-6.
50. Direct K-shell ionization probabilities in 30-MeV/u Ne- and 8.3-MeV/u C-induced reactions near zero impact parameter / V. Kravchuk, H. Wilschut, A. Van Den Berg, B. Davids, F. Fleurot, M. Hunyadi, M. De Huu, H. Lohner and A. Van Der Woude / Phys. Rev. – 2003 - A 67 – P. 052709-1 – 052709-4.
51. Projectile Z dependence of Al K-shell vacancy production in 10 MeV/amu ion-solid collisions / R. Watson, V. Horvat, J. Blackadar, and K. Zaharakis // Phys. Rev. – 2000 - A 62 – P. 052709-1 - 052709-7.
52. Projectile Z dependence of Cu K-shell vacancy production in 10-Mev/amu ion-solid collisions / R. Watson, J. Blackadar and V. Horvat // Phys. Rev. – 1999 - A 60 – 2959 - 2969.
53. Ionization and Transition Probabilities / B. Crasemann - Academic Press, New York 1975 - Volume I.
54. Inner-shell vacancy production / E. Merzbacher and H. N. Lewis // Handbuch der Physik - 1958 – 34 – P.166 - 192.
55. Dependence of Argon K-Shell Ionization on the Charge of Bare Nuclei at 1 to 2 MeV/amu / J. R. Macdonald, L. M. Winters, M. D. Brown, L. D. Ellsworth, T. Chiao, and E. W. Pettus // Phys. Rev. Lett. – 1973 – 30 – P. 251–254.
56. Tables for Born approximation calculations of 1-subshell ionization by heavy charged particles / B. Choi, E. Merzbacher and G. Khandelwal - Atomic Data – 1973 – Vol. 5 - P. 291 - 304.
57. Tables for B o m approximation calculations of K- and L-shell ionization by protons and other charged particles / G. Khandelwal, B. Choi and E. Merzbacher // Atomic Data – 1969 –Vol. 1 – P. 103 - 120.
58. Yong Peng Systematic of cross sections for targets K-vacancy production in heavy ion collisions: Doctor of Philosophy dissertation, 2006. – 197 pages.

59. Electron production in proton collisions: total cross sections / M. E. Rudd, Y. K. Kim, D. H. Madison, and J. W. Gallagher // *Re. Mol. Phys.* – 1985 – 57 – P. A 965 - 975.
60. Fast evaluation of the relativistic ionization form factor: momentum space representation / D. Trautmann, G. Baur, and F. Rosel // *J. Phys.* – 1983 – B 16 – P. 3005 3013 (1983).
61. On the semiclassical description of Coulomb ionization of inner shells / D. Trautmann and F. Rosel // *Nucl. Instrum. Methods* – 1980 – Vol. 169, P. 259 - 272.
62. On the Coulomb ionization of K-shell electrons / M. Pauli and D. Trautmann // *J. Phys.* – 1978 – B 11 – P. 667 – 686.
63. Characteristic X-Ray Production in Magnesium, Aluminum, and Copper by Low-Energy Hydrogen and Helium Ions / W. Brandt, R. Laubert, and I. Sellin // *Phys. Rev.* – 1966 – Vol. 151 – P. 56 - 59.
64. Coulomb deflection effects in ion-induced K-shell ionisation / A. Amundsen // *J. Phys.* – 1977 – B 10 – P. 2177.
65. Electronic relativistic effects in the semiclassical theory of K-shell ionisation / M. Pauli, F. Rosel, and D. Trautmann, *J. Phys.* – 1978 – B 11 – P. 2511 - 2526.
66. Coulomb deflection effects in ion-induced K-shell ionisation / A. Amundsen // *J. Phys.* – 1977 – B 10 – P. 2177.
67. Electronic relativistic effects in the K-shell coulomb ionization by massive charged particles / P. A. Amundsen and L. Kocbach // *J. Phys.* – 1975 – B:8 – P. L122-126.
68. Electronic relativistic effects in the semiclassical theory of K-shell ionisation // M. Pauli, F. Rosel, and D. Trautmann // *Journal of Physics* – 1978 – B 11: Atomic and Molecular Physics, P. 2511 - 2526.
69. Relativistic treatment of the excitation of characteristic L x-rays by the impact of heavy charged particles / B. Choi // *Phys. Rev.* – 1971 – A 4 – P. 1002 - 1008.
70. Electron – hydrogen atom collisions in the presence of a laser field: the Born - Oppenheimer approximation / H. S. Brandt and B. Koiller // *Phys. Rev.* – 1979 – A 19 – P. 1058.
71. Erratum: Electron-hydrogen-atom collisions in the presence of a laser field: Born-Oppenheimer approximation / H. S. Brandt and B. Koiller // *Phys. Rev.* – 1981 – A 23 – P. 975.
72. Electron Capture from K-Shells by Fully Stripped Ions / G. Lapicki // *Phys. Rev.* – 1981 – A 23 – P. 975.
73. Electron Capture from K-Shells by Fully Stripped Ions / G. Lapicki and F. D. Mcdanie // *Phys. Rev.* – 1980 – A22 – P. 1896.
74. A program for calculating K-, L-, and M-shell cross sections from ECPSSR theory using a personal computer / Z. Liu and S. J. Cipolla // *Comp. Phys. Comm.* – 1996 – 97 – P. 315 -330 (1996).
75. Cross Sections for K-shell X-ray Production by Hydrogen and Helium Ions in Elements from Beryllium to Uranium / G. Lapicki // *J. Phys. Chem. Ref. Data* – 1989 – 18 – P. 111.
76. Two - particle collisions. I. General relations for collisions in the laboratory system / Classical Theory of Atomic Collisions. I. Theory of Inelastic Collisions / Gryzinsk.M // *Phys. Rev.* – 1965 – 138 – P. A305 – A32.
77. Two-Particle Collisions. II. Coulomb Collisions in the Laboratory System of Coordinates/ Gryzinsk.M // *Phys. Rev.* – 1965 – 138 – P. A322 – A335.
78. Classical Theory of Atomic Collisions. I. Theory of Inelastic Collisions / Gryzinsk.M // *Phys. Rev.* – 1965 – 138 – P. A336 – A358.
79. Comparison of Experimental and Theoretical Values of Cross Sections for Electron Production by Proton Impact / M. E. Rudd, D. Gregoire and J. B. Crooks // *Phys. Rev.* – 1971 – A 3 – P. 1635 - 1640.
80. Procedure for computing cross-sections for single and multiple ionization of atoms in binary-encounter approximation by the impact of heavy charged particles / J. H. McGuire and P. Richard // *Phys. Rev.* – 1973 – A 8 - 1374 - 1384.
81. Coulomb De ection E ects on Ionization and Pair-Production Phenomena / J. Bang and J. M. Hansteen // *Kgl. Dan. Vid. Selsk. Mat.-Fys. Medd.* – 1959 – 31 №13.
82. Review of the SCA method for inner shell ionization / L. Kocbach, J. M. Hansteen and R. Gundersen // *Nucl. Instrum. Methods* – 1980 – 169 - P. 281 - 291.
83. Screening effects in the Coulomb ionization of inner shell electrons / M. Pauli, F. Rosel and D. Trautmann // *Phys. Lett.* – 1978 - A67 - P. 28 - 30.
84. The SCA description of inner-shell coulomb ionization and associated phenomena / J. M. Hansteen // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* – 1989 - B 42 – P. 426 - 435.
85. Approximate corrections for electronic relativistic effects in K-shell ionization of atoms by ions / P A Amundsen, L Kocbach and J M Hansteen // *J. Phys* – 1976 - B 9 – P. L203.
86. K. Taulbjerg, *J. Phys.* – 1977 - B10 - L341 – L346.
87. On the SCA-description of the energy- and impact parameter dependence of K-shell ionization cross sections / D. Trautmann and T. Kauer // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* – 1989 - B42 - P. 449 - 455.
88. Accurate calculation of inner-shell ionization / D. Trautmann, F. Rosel, and G. Baur // *Nucl. Instrum. Methods* – 1983 – 214 - P. 21 -27.
89. Semiclassical treatment of sub-Coulomb transfer reactions to resonant states / G. Baur, M. Pauli, and D. Trautmann, // *J. Phys.* – 1976 - G 2, P. 171 - 183.
90. Comparison of calculations of effective charges in ion-atom collisiona / G. Hock, B. Sulik, J. Vegh, I. Kadar, S. Ricz and D.Varga // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res* – 1985 – A240 - P. 475.
91. Charge scaling of ionization probabilities in ion-atom collisions for zero impact parameter / B. Sulik, G. Hock and D. Berenyi // *J. Phys.* – 1984 - B 17 – P. 3239.
92. A simple theoretical approach of multiple ionization and its application for 5.1 and 5.5 MeV/u X^{q+1} – Ne collisions / B. Sulik, I. Kadar, S. Ricz, D. Varga, J. Vegh, G. Hock and D. Berenyi // *Nucl Instrum. Methods Phys. Res* – 1987 - B28 – P. 509.
93. Multiple ionization effects in low-resolution X-ray spectra induced by energetic heavy ions / D. Banas, M. Pajek, J. Semaniak, J. Braziewicz, A. Kubala-Kukus, U. Majewska, T. Czyzewski, M. Jaskola, W. Kretschmer, T. Mukoyama, and D. Trautmann // *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* – 2002 - B 195 - P. 233 - 246.
94. Systematics of K- α x-ray satellite structure / V. Horvat, R. L. Watson and Y. Peng, *Phys. Rev.* – 2006 - A 74 – P. 022718-1 - 022718-9.

95. On the interaction of molecular spectra / F. Hund, // Z. Phys. – 1927 – 40 – P. 742.
96. The Assignment of Quantum Numbers for Electrons in Molecules. I / R. S. Mulliken // Phys. Rev. – 1928 – 32 – P. 186 - 222.
97. Systematic investigation of diabatic correlations / J. Eichler, U. Wille, B. Fastrup and K. Taulbjerg // Phys. Rev. – 1976 - A 14 – P. 707 - 717.
98. K-shell ionization in heavy-ion collisions / W. E. Meyerhof and K. Taulbjerg // Annual Review of Nuclear and Particle Science – 1977 – 27 – P. 279-332.
99. Molecular wave functions and inelastic atomic collisions / W. Lichten // Phys. Rev. – 1967 – Vol. 164 – P. 131 - 142.
100. Inner-shell vacancy production in ion-atom collisions / J. D. Garcia, R. J. Fortner, and T. M. Kavanagh // Rev. Mod. Phys. – 1973 – 45 - P. 111 – 177 (1973).
101. The Excitation of Inner-Shells in Slow Atomic Collisions / J. S. Briggs // Rep. Prog. Phys. - 1976 – 39- P. 217.
102. Reconciliation of atomic- and molecular-orbital models in slow and symmetric collisions / G. Lapicki and W. Lichten // Phys. Rev. - 1985 - A 31 №3 – P. 1354 - 1361.
103. K x-ray yield from 10 – MeV Pb + Pb collisions / W. E. Meyerhof, R. Anholt, T. Saylor and P. Bond // Phys. Rev. – 1975 - A 11 – P. 1083 - 1085.
104. X-rays from quasimolecules / R. Anholt // Rev. Mod. Phys. – 1985 – 57 – P. 995 - 1053.
105. K-vacancy sharing in near-symmetric heavy-ion collisions / W. E. Meyerhof // Phys. Rev. Lett. – 1973 – 31 – P. 1341 - 1344.
106. W. E. Meyerhof, R. Anholt and W. Wolfli // Phys. Lett. – 1979 - B 84 – P. 59.
107. Ion Induced X-Rays, edited by I.V. Mitchel and F. Ziegler.
108. SRIM-2003 / J. F. Ziegler // Nucl Instrum. Methods Phys. Res – 2004 – Vol. 219 – 220 – P. 1027 – 1036.
109. X-ray wavelengths / J. A. Bearden // Rev. Mod. Phys. – 1967 - 39, P. 78 - 124.
110. Reevaluation of X-ray Atomic Energy Levels / J. A. Bearden and A. F. Burr // Rev. Mod. Phys. – 1967 – 39 – P. 125 - 142.
111. Recommended atomic electron binding energies, 1s to 6p_{3/2}, for the heavy elements, Z=84 to 103F / T. Porter and M. S. Freedman // J. Phys. Chem. Ref. Data – 1978 – 7 – P. 1267 - 1285.
112. Atomic electron binding energies / K. D. Sevier // At. Data Nucl. Data Tables – 1979 – Vol. 24 – P. 323 - 371.
113. X-ray transition energies: new approach to a comprehensive evaluation / R. D. Deslattes, E. G. Kessler, P. Indelicato, L. De Billy, E. Lindroth and J. Anton // Rev. Mod. Phys. – 2003 – Vol. 75 – P. 35 - 99.
114. Atomic Radiative and Radiationless Yields for K and L Shells / M. O. Krause // J. Phys. Chem. Ref. Data – 1979 – Vol. 8 – P. 307.
115. K-Shell Auger Transition Rates and Fluorescence Yields for Elements Be-Ar / E. J. McGuire // Phys. Rev. – 1969 -185 – P. 1 - 6.
116. K-Shell Auger Transition Rates and Fluorescence Yields for Elements Ar-Xe / E. J. McGuire // Phys. Rev. – 1970 - A2 – P. 273 - 278.
117. Nonrelativistic K-shell auger rates and matrix elements for $4 < z \leq 54$ / D. L. Walters and C. P. Bhalla // Phys. Rev. – 1971 - A 3 – P. 301 – 315.
118. Nonrelativistic auger rates, x-ray rates and fluorescence yields for the K shell / D. L. Walters and C. P. Bhalla // Phys. Rev. – 1971 - A 3 - P. 1919 - 1927.
119. Z dependence of the K-LL auger rates / D. L. Walters and C. P. Bhalla // Phys. Rev. – 1971 - A3 – P. 519 - 520.
120. Atomic radiation transition probabilities to the 1s state and theoretical K-shell fluorescence yields / V. O. Kostroun, M. H. Chen and B. Craseman - Phys. Rev. – 1971 - A3 – P. 533 - 545.
121. Auger and Coster-Kronig transition probabilities to the atomic 2s state and theoretical L₁ fluorescence yields / B. Crasemann, M. H. Chen and V. O. Kostroun / Phys. Rev. – 1971 - A4 – P. 2161 - 2164.
122. Atomic radiation transition probabilities to the 1s state and theoretical K-shell fluorescence yields / W. Bambynek, C. D. Swift, B. Craseman, H. U. Freund, P. V. Rao, R. E. Price, H. Mark and R. W. Fink // Rev. Mod. Phys. – 1972 – Vol. 44 – P. 716.
123. Precise measurement of K-shell fluorescence yield in indium. An improved test of internal-conversion theory / N. Nica, J. C. Hardy, V. E. Jacob, J. R. Montague and M. B. Trzhaskovskaya // Phys. Rev. – 2005 - C 71 – P. 54320. Kucukonder / J. Quant. Spectr. Rad. Tran. // 2005 – Vol. 90 – P. 125.
124. K-shell fluorescence parameters of medium-Z elements / S. B. Gudennavar, N. M. Badiger, S. R. Thontadarya and B. Hanumaiah // Rad. Phys. Chem. – 2003 – Vol. 68, P. 721 - 726.
125. X-ray fluorescence in some rare earth and high Z elements excited by 661.6 keV gamma-rays / T. Yashoda, S. Krishnaveni, S. Gowda, T. K. Umesh and R. Gowda // Pramana- Journal of Physics – 2002 – Vol. 58 - P. 31 - 38.
126. Measurement of K shell fluorescence cross sections and K shell fluorescence yields for the atomic region $22 \leq Z \leq 64$ by 59.5 keV photons / O. Simsek, S. Yilmaz, D. Karagoz and M. Ertugrul // J. Radio. Nucl. Chem. – 2002 – Vol. 253 – P. 143 - 147.
127. K shell fluorescence yields for elements with $33 < Z < 53$ using 59.5 keV photons / O. Simsek, M. Ertugrul, D. Karagoz, G. Budak, A. Karabulut, S. Yilmaz, O. Dogan, U. Turgut, O. Sogut, R. Polat and A. Gurol // Rad. Phys. Chem. – 2002 – Vol. 65 – P. 27 - 31.
128. Total K fluorescence yields for Fe, Cu, Zn, Ge and Mo / J. K. Pious, K. M. Balakrishna, N. Lingappa and K. Siddappa // J. Phys. – 1992 - B 25 – P. 1155.
129. K-fluorescence yields of Ag and In / M. Takiue and H. Ishikawa // Nucl. Instrum. Methods – 1980 – Vol. 173, P. 391 - 394. Langenberg // Ph.D. dissertation – 1978 - University of Utrecht – Utrecht - Netherlands.
130. The Auger Effect and Other Radiationless Transitions / E. H. S. Burhop - Cambridge University Press, New York, - 1952.
131. R. L. Watson, T. Chiao, and F. E. Jensen // Bull. Amer. Phys. Soc. – 1974 – 19 – P. 591.
132. High – resolution study of ion-induced $K\alpha_{1,2}$ x-ray spectra from high-Z elements / D. F. Anagnostopoulos, G. Borchert, D. Gotta, K. Rashid, D. H. Jakubassa- Amundsen and P. A. Amundsen // Phys. Rev. – 1998 - A 58, P. 2797 - 2814.
133. K fluorescence yields and level widths, in the presence of an L spectator hole / D. F. Anagnostopoulos // J. Phys. – 1995 - B 28 - P. 47 - 52.
134. Simultaneous L- and M-shell ionization of a ⁸⁰Se target deduced from the analysis of energy shifts and relative intensities of K x-ray lines induced by various projectiles / M. Polasik, S. Raj, B. B. Dhal, H. C. Padhi, A. K. Saha, M. B. Kurup, K. G. Prasad and P. N. Tandon // J. Phys. – 1999 - B 32 – P. 3711.

135. Multiple ionization and coupling effects in L-subshell ionization of heavy atoms by oxygen atoms / M. Pajek, D. Banas, J. Semaniak, J. Braziewicz, U. Majewska, S. Chojnacki, T. Czyzewski, I. Fijal, M. Jaskola, A. Glombik, W. Kretschmer, D. Trautmann, G. Lapicki and T. Mukoyama // Phys. Rev. – 2003 - A 68 - P. 022705 - 022722 (2003).
136. Target – atom inner – shell vacancy distributions created in collisions with heavy ion projectiles / V. Horvat, R. Watson and J. Blackadar // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. – 2000 - B 170 - P. 336 – 346.
137. K_{α} and K_{β} satellite and hypersatellite fluorescence yields of Mg and Si / M. Kobal // Nucl Instrum. Methods Phys. Res – 2005 - B 229 – P. 165 - 179.
138. K-shell processes in heavy-ion collisions in solids and the local plasma approximation / U. Kadhane, C. C. Montanari and C. T. Lokesh // Phys. Rev. – 2003 - A 67 – P. 032703-1 – 032703-7.
139. Effects of multiple ionization on the fluorescence yield of carbon / L. H. Toburen and F. P. Larkins // Phys. Rev – 1972 – A6 – P. 2035 – 2038.
140. Z dependence of $K \alpha$ x-ray satellite structure in heavy-ion—atom collisions / R. L. Watson, F. E. Jenson and T. Chiao / Phys. Rev. – 1974 - A 10 – P. 1230 - 1244.
141. Software for the spectra processing in x-ray analytical methods / I.D Goralachev and B.B. Knyazev // Proceed. of the VII International Conference “Nuclear and radiation physics” – 2007 - Almaty.
142. Методы анализа на пучках заряженных частиц / А.А. Ключников [и др.] - Киев, Наукова думка, 1987.
143. Bissinger G.A., Shafroth S.M., A.W. Waltner, Phys. Rev. – 1972 - A 5 – P. 2046 - 2052.
144. Messelt, S., Nucl. Phys. – 1958 – 5 - P. 435 -446.
145. Relativistic K-shell Auger rates, level widths, and fluorescence yields / M.H. Chen, B. Crasemann, H. Mark // Phys. Rev. – 1980 - A 21 – P. 436 - 441.

АУЫР ИОНДАРМЕН ИНДУКЦИЯЛАНҒАН СИПАТТАМАЛЫҚ РЕНТГЕНДІК СӘУЛЕ

Горлачев И.Д., Дегтярев В.В., Иванов И.А., Лысухин С.Н., Пеньков Ф.М.

ҚР ҰАО Ядролық физика институты, Қазақстан, Алматы

Астана қаласында ДЦ-60 үдеткішінде сипаттамалық рентгендік сәуленің шығу қималарын зерделеу және жұқа қатты денелі нысаналармен ауыр үдетілген бөлшектердің өзара әрекетінде пайда болатын спектрлік ерекшеліктерін зерттеу бойынша жұмыстар легі жалғастырылған болатын. Осы мақалада жүргізілген эксперименттердің нәтижелері ұсынылған. Сонымен қатар мақалада нысана атомдарымен иондардың өзара әрекетінде болатын үрдістерді сипаттау әрекеті жасалған. Әдебиеттік шолу келтірілген.

HEAVY IONS INDUCED X-RAYS

I.D. Goralachev, V.V. Degtyarev, I.A. Ivanov, S.N. Lysukhin, F.M. Penkov

Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

Research of the spectrum peculiarities and study of the heavy ion induced x-ray emission cross section production have been continued at the DC-60 accelerator in Astana. The carried out experiment results and literature survey are presented in this paper.

УДК 539.21:539.12.04:669.3

EBSD-ИЗУЧЕНИЕ МАРТЕНСИТНОГО ПРЕВРАЩЕНИЯ В РЕАКТОРНОЙ СТАЛИ 12X18H10T, ХОЛОДНОДЕФОРМИРОВАННОЙ И ОБЛУЧЕННОЙ ИОНАМИ КРИПТОНА С ЭНЕРГИЕЙ 1.56 МЭВ/НУКЛОН

¹⁾Русакова А.В., ²⁾Максимкин О.П., ²⁾Гусев М.Н.

¹⁾Астанинский филиал Института ядерной физики НЯЦ РК, Казахстан

²⁾Институт Ядерной физики НЯЦ РК, Алматы, Казахстан

Проведены комплексные исследования нержавеющей стали 12X18H10T в исходном, деформированном и облученном (^{84}Kr , $E=1,56$ МэВ/нуклон, $\Phi_1=1\cdot 10^{15}$ ион/см², $\Phi_2=4\cdot 10^{15}$ ион/см²) состояниях с применением магнитометрии, рентгеноструктурного анализа и электронной сканирующей микроскопии с EBSD-анализом.

Применение метода EBSD позволило выявить различия в необлученных и облученных образцах стали 12X18H10T, заключающееся в том, что в приповерхностном слое облученного образца формируются α - и ϵ -фазы. Установлено, что величина флюенса влияет на количество магнитной α -фазы.

Исследованы особенности морфологии мартенситной α -фазы и показано, что в деформированном стальном образце существует α' -мартенсит двух масштабных уровней.

ВВЕДЕНИЕ

Известно, что высоколегированные аустенитные нержавеющие стали, широко используемые при строительстве атомных реакторов на быстрых нейтронах, метастабильны и при длительном воздействии радиации и напряжений (деформаций) в них индуцируется α -фаза. Поскольку с образованием этой фазы связано не только изменение кристаллической решетки (ГЦК $\rightarrow$ ОЦК), но и изменение магнитных, механических и коррозионных свойств, то изучение $\gamma\rightarrow\alpha$ -перехода в облученных сталях является актуальной задачей радиационного материаловедения и требует пристального к себе внимания [1]. Именно поэтому, как показал анализ литературы, имеется достаточно много сведений о закономерностях и особенностях $\gamma\rightarrow\alpha$ -превращения в облученных материалах. Так, эффект мартенситного превращения в реакторных сталях неоднократно наблюдали в результате их облучения высокоэнергетическими частицами [2,3] и пластической деформации [4,5].

До недавнего времени бездиффузионный $\gamma\rightarrow\alpha'$ -переход, протекающий в процессе холодной деформации нержавеющих сталей, исследовали, применяя методы электронной микроскопии, рентгеноструктурного анализа и определения магнитных свойств [6, 7]. При этом в последнем случае измеряли не только объемное содержание α' -фазы, но и ее распределение по рабочей длине деформируемого образца. Однако, из анализа результатов этих измерений было не ясно, какие изменения в микроструктуре ответственны за эффект повышения магнитных характеристик. Применение с этой целью рентгеноструктурного анализа при небольших (до 2-3%) значениях ферромагнитной α -фазы ограничено его чувствительностью, а использование метода просвечивающей электронной микроскопии предполагает разрушение исследуемого образца, что в большинстве случаев недопустимо. В этой связи для изучения закономерностей $\gamma\rightarrow\alpha'$ -перехода требуются другие,

более чувствительные методики, способные улавливать незначительные изменения в микроструктуре и фазовом составе материала, совмещая их с данными по изменениям элементного состава или локальным ориентировкам кристаллитов.

Одним из таких методов исследования является метод, сочетающий в себе возможности микроскопии и структурного анализа, который получил название «дифракционного анализа отраженных электронов» (EBSD). Данный метод используется при исследовании широкого круга кристаллических материалов и, в частности, с целью определения микротекстур, ориентации кристаллитов и свойств границ зерен [8,9].

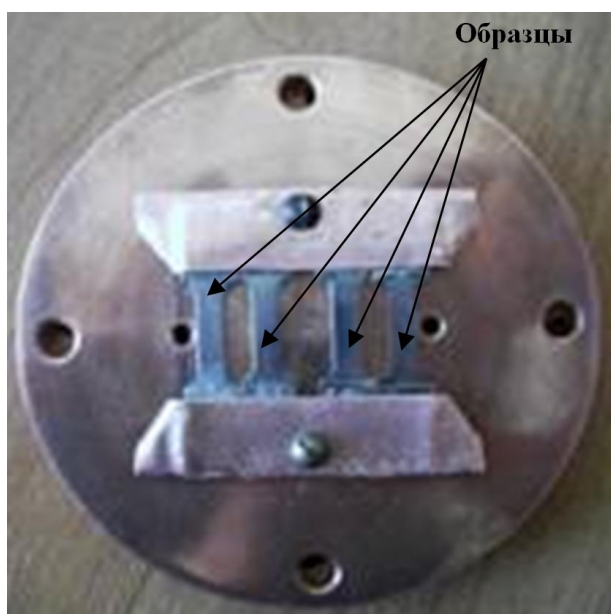
В настоящей работе приведены результаты экспериментов по изучению методом EBSD структурно-фазовых изменений в аустенитной хромоникелевой стали, индуцированных деформацией и облучением высокоэнергетическими частицами.

ОБРАЗЦЫ И ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ МЕТОДИКИ

В качестве объектов для исследования были выбраны образцы нержавеющей стали 12X18H10T (аустенизация 1050°C, 30 минут), подвергнутые статическому растяжению при 20°C, а также аналогичные образцы, облученные высокоэнергетическими ионами криптона на ускорителе ДС-60. С целью облучения четыре плоских, толщиной 300 мкм, образца для механических испытаний монтировали в специальный держатель (рисунок 1) и помещали в вакуумную камеру (10⁻⁴Па). Во время облучения поддерживалась температура не более 100°C и для этого осуществлялось принудительное охлаждение мишени проточной водой. Облучение проводилось в два этапа: на первом – образцы с номерами 02 и 15 были облучены до флюенса 4·10¹⁵ част/см² ($E=1,56$ МэВ/нукл), тогда как образцы 05 и 09 – до 1·10¹⁵ част/см². Через год эти же образцы были вновь облучены в тех же условиях так, что окончательно максимальный флюенс составил

$9 \cdot 10^{15}$ част/см² для образцов 02 и 15, а для образцов 05 и 09 $\Phi_i = 6 \cdot 10^{15}$ част/см².

После облучения определяли содержание ферромагнитной фазы в изначально парамагнитной стали при помощи микрозонда Feritoscope MP-30 с погрешностью измерений $\sim 0,01\%$. Рентгеноструктурные исследования фазового состава исходных, деформированных и облученных стальных образцов выполняли на универсальном дифрактометрическом комплексе D8 ADVANCE (Bruker AXS GmbH) с использованием $\text{CoK}\alpha$ -излучения, снабженного сцинтилляционным детектором. Угловая скорость сканирования составляла 2 град/мин, скорость вращения ~ 60 об/мин, что позволяло получать наиболее полную картину отражающих плоскостей содержащихся в стали фаз. Абсолютная точность определения углов (θ и 2θ) составляла $\leq \pm 0.005^\circ$.



Слева направо: № 05; № 02; № 15; № 09

Рисунок 1. Медный держатель для облучения 4-х образцов в вакуумной камере ускорителя тяжелых ионов ДС-60

Наблюдения облученной поверхности, а также фазовый анализ проводили при помощи растрового электронного микроскопа JSM-7500F, снабженного HKL-детектором. Для получения текстурных характеристик образцов использовался метод EBSD с использованием Кикучи-линий. Разрешение метода составляет 200 нм, точность определения ориентации 1° , при этом используется специальный пакет программ анализа экспериментальных данных. Автоматическое определение кристаллографической ориентации на поверхности проводилось с шагом 0,05 мкм; в каждом эксперименте с облученными образцами использовалась область 310×230 мкм, время сканирования – около 4-х часов.

В общих чертах метод EBSD-анализа заключается в следующем. Полированный образец, наклоненный на угол 70° , помещается в растровый электрон-

ный микроскоп (РЭМ) и исследуемая поверхность подвергается автоматическому пошаговому сканированию «от точки к точке». Дифрагированные электроны, обратно рассеянные от каждой точки сканирования, формируют дифракционную Кикучи-картину на флуоресцентном экране, установленном внутри камеры микроскопа, с которого, в свою очередь, изображение передается на цифровую видеокамеру. Дифракционные картины, получаемые с каждой из точек сканирования, оцифровываются и автоматически усредняются. Процесс повторяется до тех пор, пока не будет отсканирована заданная площадь поверхности образца. Подробное описание метода EBSD изложено в [5].

Основная трудность при использовании EBSD-анализа состоит в подготовке образцов. Высокими являются требования к шероховатости поверхности ввиду того, что образец при съемке наклонен на значительный угол и даже относительно небольшой рельеф может существенно ухудшить результаты: снизить «степень узнаваемости» той или иной фазы. Для исследованных стальных образцов эта величина «узнаваемости» лежала в интервале 60-85%. Отметим, что до 100% «узнаваемости» программа делает подбор автоматический.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Мартенситное $\gamma \rightarrow \alpha'$ превращение при деформации

На рисунке 2а приведена характерная микроструктура деформированной нержавеющей стали: видны линии скольжения, двойники и отдельные пластины мартенситной α' -фазы.

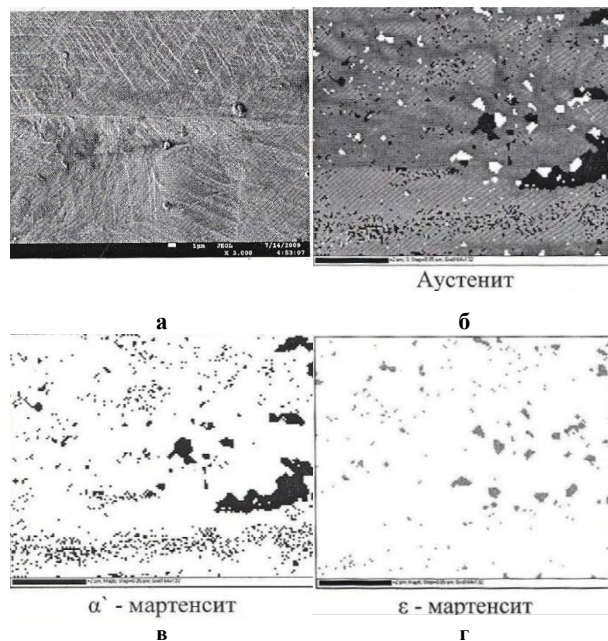


Рисунок 2. а) Типичный рельеф поверхности для деформированного образца стали 12Х18Н10Т, деформированного растяжением при 20 °С; б, в, г) Карты фаз, снятые в режиме EBSD для деформированного стального образца

Об этом же свидетельствуют приведенные карты распределения фаз в стальном образце (рисунок 2 б,в,г), полученные методом EBSD, из которых следует, что материал является трехфазным – в аустенитной матрице присутствуют включения ϵ -фазы (ГПУ-решетка), а также α' -мартенсита деформации, что подтверждается также данными магнитометрии и не противоречит литературным представлениям [5].

Характерный размер образований α' -мартенсита деформации составляет порядка нескольких микрон, что также согласуется с результатами большинства работ. Наряду с этим, в аустенитных зернах присутствуют очень мелкодисперсные частицы α' -мартенсита (сотые доли микрона), достаточно равномерно распределенные в матрице. Иными словами, матрица стального деформированного образца содержит α' -мартенситные образования двух масштабов: более микрона и субмикронные.

Мартенситное $\gamma \rightarrow \alpha'$ -превращение при облучении ионами криптона

На рисунке 3 приведены фотографии поверхности образцов стали, облученных различными флюенсами ионов ^{84}Kr с энергией 1,56 МэВ/нуклон. Видно, что после воздействия ускоренными тяжелыми частицами ($1 \cdot 10^{15}$ част/см²) на облученной поверхности легко различаются «вторичные образования»: карбиды, нитриды и блистеры – полости в приповерхностном слое, заполненные газом. Вероятнее всего, что основной причиной, по которой стало возможным их наблюдение, является:

- для карбидов и нитридов — ускоренное ионное травление твердого раствора аустенита по сравнению с более твердыми частицами;
- для блистеров – «застревание» атомов криптона и их объединение в приповерхностном слое.

Средний размер частиц карбидов (нитридов) составляет от 100 до 200 нм. Блистеры, в отличие от карбидов (нитридов), имеют правильную округлую форму, а диаметр их гораздо меньше размера вторичных образований и составляет 20-60 нм. При увеличении дозы облучения до $4 \cdot 10^{15}$ част/см² наряду

с образованием блистеров имеет место интенсивное формирование вскрытых блистеров (флокенов), а также эрозия поверхности (рисунок 3б).

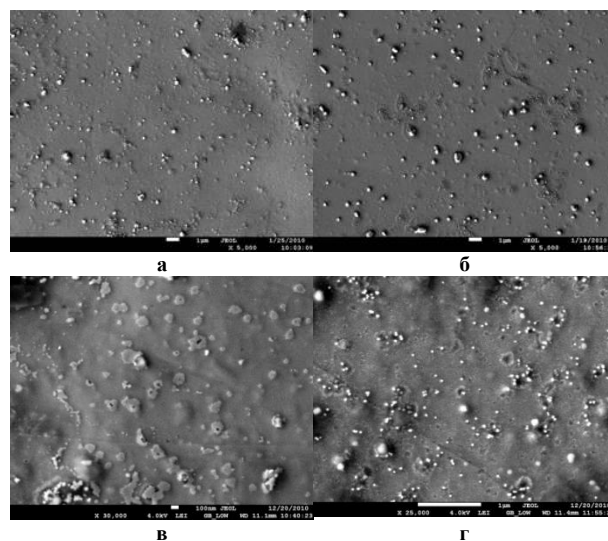


Рисунок 3. Фотографии структуры поверхности образцов стали 12Х18Н10Т, после облучения ионами ^{84}Kr с энергией 1,56 МэВ/нуклон при флюенсе: а) $1 \cdot 10^{15}$; б) $4 \cdot 10^{15}$; в) $6 \cdot 10^{15}$; г) $9 \cdot 10^{15}$ ион/см²

На рисунке 4 показаны гистограммы распределения вторичных образований для образцов стали 12Х18Н10Т, облученных различными флюенсами высокоэнергетических ионов криптона. Видно, что с ростом флюенса облучения увеличивается количество флокенов и ровная, отполированная до облучения, поверхность образца постепенно покрывается мелкими язвами, что, очевидно, необходимо учитывать при использовании аустенитной нержавеющей стали в качестве конструкционного материала для первой стенки термоядерного реактора.

Элементный анализ, выполненный с поверхности мелких округлых образований, наблюдаемых внутри кристаллитов, подтвердил предположение, что это карбидные частицы (таблица 1).

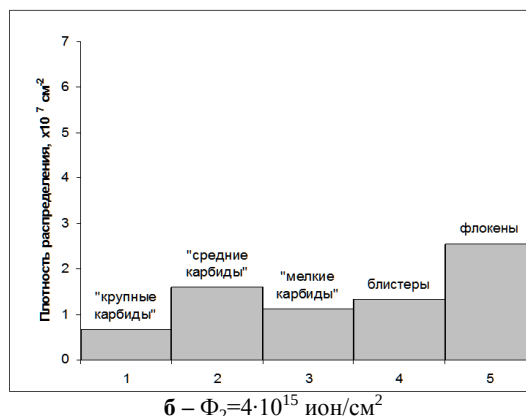
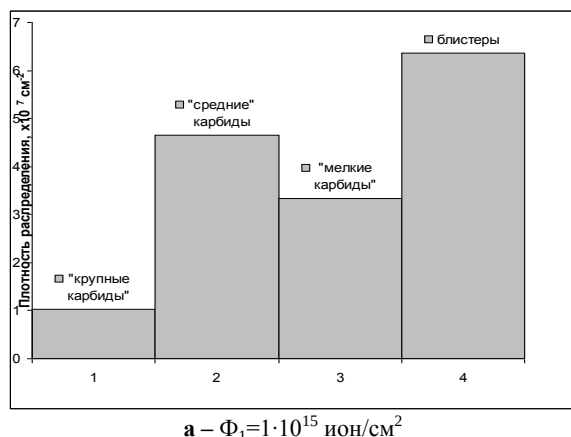


Рисунок 4. Гистограммы распределения вторичных образований в стали 12Х18Н10Т, облученной ионами ^{84}Kr (1,56 МэВ/нуклон)

Таблица 1. Элементный анализ карбидных частиц (образец № 05, $\Phi_i=6 \cdot 10^{15}$ част/см²)

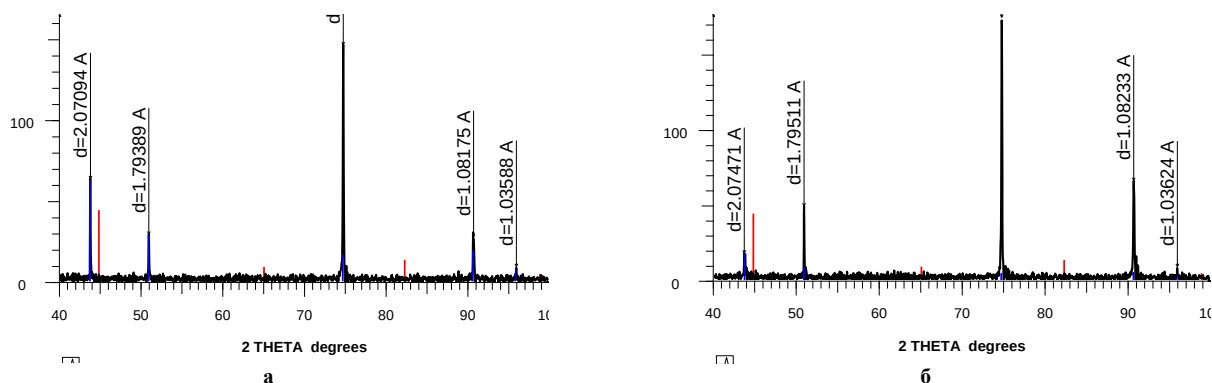
Элемент	C	Al	Si	Ti	Cr	Mn	Fe	Ni	Общ.
Весовые %	24,2	0,3	0,5	0,4	14,2	0,8	51,9	7,4	100

Измерения намагниченности образцов стали, до и после облучения ионами криптона, а также рентгеноструктурные исследования не обнаружили магнитной фазы в образцах, облученных до флюенса $4 \cdot 10^{15}$ част/см² (рисунок 5). Учитывая тот факт, что глубина проникновения магнитного поля щупа слишком велика (~1мм), а чувствительность дифрактометра не позволяет выявить столь малое содержание феррофазы, то ее количество и морфологию определяли методом EBSD-анализа.

На рисунке 6а приведены фотографии, полученные с использованием метода EBSD. Видны чешуйкообразные дефекты и вздутия, которые распределены неравномерно. Сопоставление с рисунком 6б, где изображена зеренная структура, показывает, что плотность «блистеров» различна в различных зернах

– в одних кристаллах дефектов меньше, в других их плотность существенно выше.

Карта распределения фаз (рисунок 6с) показывает, что в результате облучения тяжелыми высокоэнергетическими частицами в приповерхностном слое образца стали 12Х18Н10Т образуются две мартенситные фазы (α и ϵ). Особенностью α -фазы является чрезвычайная мелкодисперсность (менее 0,1 микрона) наряду с очень небольшим количеством крупных образований. Кроме того, ОЦК-фаза образуется преимущественно в «чистых местах», там, где нет блистеров. Отличительной особенностью является также и то, что α -мартенсит появляется в зернах преимущественно с ориентацией [001] и тяготеет к границам зерен. В то же время ϵ -мартенсит (ГПУ) зарождается, в основном, в зернах с ориентацией [111].



*Рисунок 5. Дифрактограммы образцов аустенитной стали 12Х18Н10Т:
а) исходного; б) облученного ионами ⁸⁴Kr ($4 \cdot 10^{15}$ част/см²)*

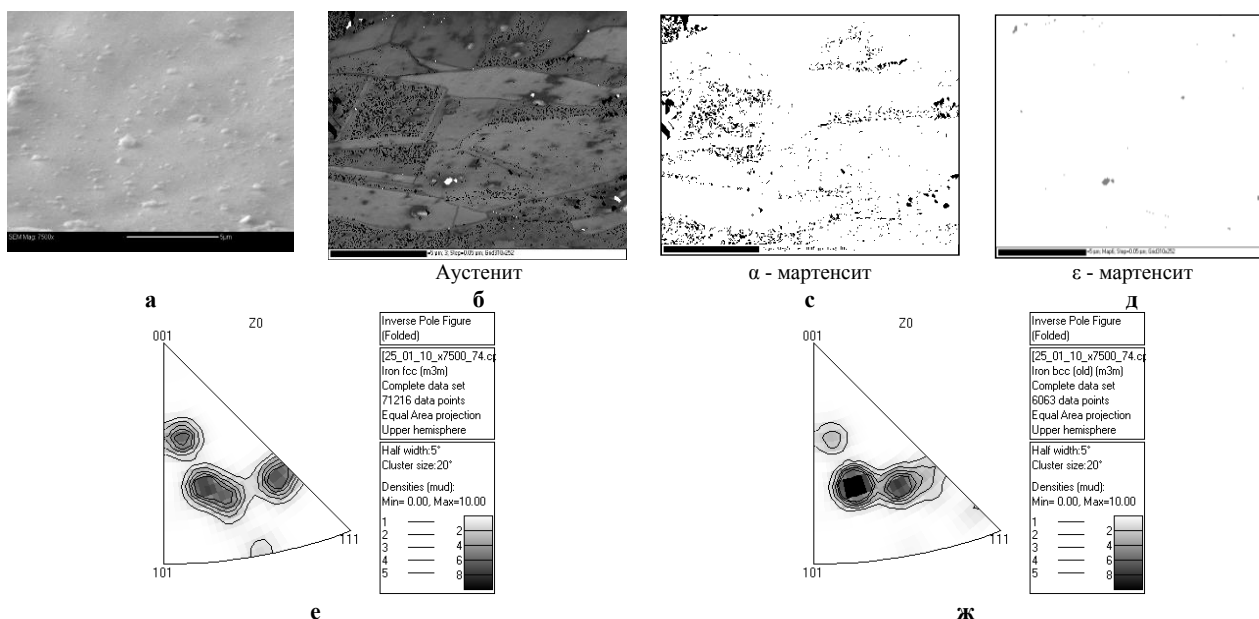


Рисунок 6. Карта фаз, снятая в режиме EBSD, для образца стали 12Х18Н10Т, облученного ионами ⁸⁴Kr флюенсом $\Phi_1=1 \cdot 10^{15}$ ион/см² (шаг сканирования 0,05 мкм) (x7500)

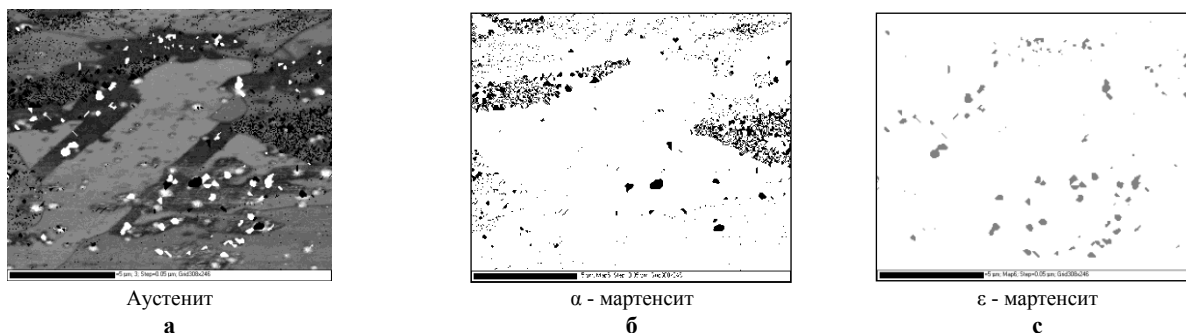


Рисунок 7. Карта фаз, снятая в режиме EBSD, $\times 7500$ для образца стали 12Х18Н10Т, облученного ^{84}Kr флюенсом $\Phi_2 = 4 \cdot 10^{15}$ ион/см 2 (шаг сканирования 0,05 мкм)

Обращает на себя внимание то, что ориентация зерна, в котором протекают фазовые превращения, не изменяется при изменении флюенса ионов. Рисунок 7 также позволяет полагать, что ориентация зерна является фактором, определяющим вид дефектной структуры: образуются или «блистеры» (101), или α -фаза (001).

Количество α -мартенсита в образце стали, облученном флюенсом $1 \cdot 10^{15}$ ион/см 2 , составляет около 8% (ϵ -мартенсита – 1%), тогда как в образце стали, облученном флюенсом $4 \cdot 10^{15}$ ион/см 2 , α -фазы около 9% (ϵ -мартенсита – 2%). После дооблучения образцов ионами криптона (суммарный флюенс $9 \cdot 10^{15}$ ион/см 2), исследования, проведенные с помощью феррозонда, обнаружили наличие ферромагнитной фазы в аустенитной матрице. При этом методом EBSD подтверждено присутствие в ГЦК-решетке одновременно ϵ и α фаз.

Обращает на себя внимание тот факт, что мартенситная α -фаза, образующаяся при низкотемпературном облучении тяжелыми ионами, в основном мелкодисперсная, т.е. процессы ее зарождения преобладают над процессами роста. В этой связи следует отметить, что ранее при изучении закономерностей кинетики $\gamma \rightarrow \alpha'$ -перехода при деформации облученной нейтронами стали 12Х18Н10Т было также обнаружено, что облучение влияет, в основном, на процесс зарождения α -фазы, а не на ее рост [7]. Воз-

можно, это связано с упрочнением облучаемой решетки дефектами радиационного происхождения.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведены комплексные исследования изменений структуры, фазового состава и магнитных свойств нержавеющей стали 12Х18Н10Т в результате холодного деформирования и облучения тяжелыми ионами (^{84}Kr , $E = 1,56$ МэВ/нуклон, $\Phi_{\text{max}} = 9 \cdot 10^{15}$ ион/см 2) с использованием методов магнитометрии, рентгеноструктурного анализа и электронной сканирующей микроскопии. Применение метода EBSD позволило выявить структурно – фазовое различие необлученных и облученных образцов стали 12Х18Н10Т, заключающееся в том, что в приповерхностном слое образца при облучении ускоренными ионами криптона формируются выделения α - и ϵ -фазы. Установлено, что с ростом флюенса заряженных частиц количество образующейся магнитной α -фазы несколько увеличивается.

Исследованы особенности морфологии мартенситной α -фазы и показано, что как в деформированном, так и в облученном стальных образцах существует α' -мартенсит двух масштабных уровней: мелкокristаллический (<1 мкм) и крупнокristаллический (>10 мкм).

ЛИТЕРАТУРА

- Максимкин, О.П. Фазово-структурные процессы и их роль в упрочнении и охрупчивании облученных металлических материалов / О.П. Максимкин // Автореферат докторской диссертации. – 1996. – Алматы. – 35 с.
- Cole, J. Post-irradiation deformation characteristics of heavy-ion irradiated 304L 55 /J. Cole, S. Bruemer //Journal of Nucl. Mater. – 1995. – V. 225. – P. 53-58.
- Хофман, А. Фазовые превращения в аустенитных сталях, облученных высокоэнергетическими тяжелыми ионами /А. Хофман, А.Д. Дидык, Т. Коханьски, В.К. Семина //Металлы. – 2001. – № 3. – С. 109-114.
- Ибрагимов, Ш.Ш. Изменение феррофазы в облученной стали 12Х18Н10Т при деформировании /Ш.Ш. Ибрагимов, О.П. Максимкин, С.Д. Челноков //Изв. АН КазССР, сер.: Физ.-мат. – 1989. – № 2.
- Kadyrzhanov, K.K. Martensitic Transformation in neutron Irradiated and Helium Implanted Stainless Steels /K.K. Kadyrzhanov, O.P. Maksimkin //Journal of ASTM. – 2004. – V. 1. – N 4, – P. 105-118.
- Цай, К.В. Особенности формирования микроструктуры при пластической деформации в облученной нейтронами нержавеющей стали 12Х18Н10Т /К.В. Цай, О.П. Максимкин, М.Н. Гусев [и др.] //Вестник НЯЦ РК. – 2009. – № 4. С. 77-86.
- Максимкин, О.П. Влияние реакторного облучения на закономерности мартенситного $\gamma \rightarrow \alpha$ -превращения в стали 12Х18Н10Т при деформации /О.П. Максимкин, Д.Т. Бердалиев //Вестник НЯЦ. – 2009. вып. 3. – С. 167-172.

8. Gey, N. Electron Backscattered Diffraction Study of ε/α' -martensitic Variants Induced by Plastic Deformation in 304 Stainless Steel /N. Gey, B. Petit and M. Humbert //Metallurg. Transaction. – 2005. – V. 36. – N 12. – P. 3291-3299.
9. Wu, X. Analysis of notch strengthening of 316L Stainless steel with and without irradiation-induced hardening using EBSD and FEM / X. Wu, X. Pan, J. Stubins //Journal of Nuclear Material. – 2007. – V. 361. – P. 228-238.

**СҮЫҚДЕФОРМАЦИЯЛАНҒАН ЖӘНЕ 1,56 МЭВ/НУКЛОН ЭНЕРГИЯЛЫ
КРИПТОН ИОН–ДАРЫМЕН СӘУЛЕЛЕНДІРІЛГЕН РЕАКТОРЛЫ 12X18H10T
БОЛАТТАҒЫ МАРТЕНСИТТІ ТҮРЛЕНУДІҢ EBSD-ЗЕРТТЕЛУІ**

¹⁾Русакова А.В., ²⁾Максимкин О.П., ²⁾Гусев М.Н.

¹⁾ҚР ҰЯО Ядролық физика институтының Астана филиалы, Қазақстан

²⁾ҚР ҰЯО Ядролық физика институты, Қазақстан, Алматы

12X18H10T тоттанбайтын болатқа бастапқы, деформацияланған және сәулелендірілген (^{84}Kr , $E=1,56$ МэВ/нуклон, $\Phi_1=1\cdot 10^{15}$ ион/см², $\Phi_2=4\cdot 10^{15}$ ион/см²) күйлерінде магнитометрия, рентгенқұрылымдық талдау және EBSD-талдауы бар, электрондық скандаушы микроскопияны қолданумен комплекстік зерттеулер жүргізілген.

EBSD әдісін қолдану 12X18H10T болаттың сәулелендірілмеген және сәулелендірілген үлгілеріндегі айырмашылықты анықтауға мүмкіндік берді: сәулелендірілген үлгінің беттік алды қабатында α - және ε - фазалары қалыптасады. Флюенс шамасының магниттік α -фазаның мөлшеріне ықпал ететіні анықталған.

Мартенситтік α -фазаның морфологиясының ерекшеліктері зерттелген және деформацияланған болат үлгіде қос масштабтық деңгейлердегі α' -мартенсит болатыны көрсетілген.

**EBSD STUDIES OF MARTENSITE TRANSFORMATIONS IN 12CR18NI10TI
COLD-WORKED REACTOR STEEL IRRADIATED BY KR IONS (E = 1.56 MEV/NUCLEON)**

¹⁾A.V. Rusakova, ²⁾O.P. Maksimkin, ²⁾Gusev M.N.

¹⁾Affiliated Institute of Nuclear Physics NNC RK in Astana, Kazakhstan

²⁾Institute of Nuclear Physics NNC RK, Almaty, Kazakhstan

The complex investigations of the stainless steel 12Cr18Ni10Ti in unconfigured, strained and irradiated states (^{84}Kr , $E=1,56$ MeV/nucleon, $F_1=1\cdot 10^{15}$ ion/sm², $F_2=4\cdot 10^{15}$ ion/sm²) were performed using magnetometry, X-ray structure analysis and SEM investigations with EBSD analysis.

Application of the EBSD technique allowing to determine the differences in non-irradiated and irradiated samples- the α - and ε - phases was formed in near-surface layer. It was established that fluence value has effect on the α - phase amount.

The martensite α - phase morphology characteristics were investigated, the double scale levels α' -martensite was found in deformed samples.

УДК 621.373:535

ТЕОРЕТИЧЕСКИЙ РАСЧЕТ ПОРОГА ВОЗБУЖДЕНИЯ ВЫНУЖДЕННОГО КОМБИНАЦИОННОГО РАССЕЯНИЯ В УСЛОВИЯХ ОПТИКО-СТОЛКНОВИТЕЛЬНОГО ЗАСЕЛЕНИЯ ИСХОДНОГО УРОВНЯ ПРИ ПРИСУТСТВИИ БУФЕРНОГО ГАЗА

Бимагамбетов Т.С.

Алматинский университет энергетики и связи, Алматы, Казахстан

В работе теоретически исследованы порог и энергия ВКР при ОС заселении исходного уровня в парах щелочных металлов в присутствии буферного газа. Получена зависимость порога интенсивности лазера от концентрации буферного газа и от атомов щелочных металлов, а также от частоты лазерного излучения. Рассмотрены два случая: 1. Режим сильного истощения населенностей уровня 2. Он реализуется в области малых расстройек (вблизи атомного перехода 2-3). 2. Режим слабого истощения - он реализуется в области больших расстройек. Установлено, что в первом случае порог вынужденного ВКР с увеличением концентрации буферного газа уменьшается, а во втором - не зависит. При слабой истощенной населенности резонансного уровня порог возбуждения ВКР от расстройки Δ_{23} растет линейно, в то время при сильно истощенной населенности не зависит от расстройки.

ВВЕДЕНИЕ

В работах [1,2] экспериментально и теоретически исследован порог возбуждения и энергия ИК ВКР (в дальнейшем ВКР) при оптико-столкновительном (ОС) заселении исходного уровня в чистых парах щелочных металлов. ОС заселение исходного уровня 2 и возбуждение ВКР на частоте ω_s осуществляются излучением одного лазера, частота которого перестраивается в окрестности перехода 2-3 (рисунок 1). При таком возбуждении ВКР излучения выявляются некоторые особенности (населенность исходного уровня ВКР не постоянна), чем при обычном двух лазерном возбуждении, один лазер заселяет уровень 2, другой настраивается на атомный переход 2-3 [3].

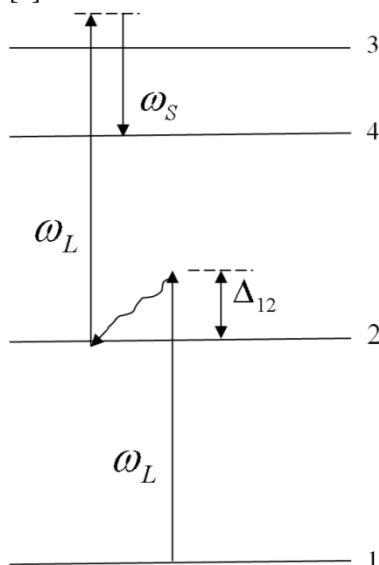


Рисунок 1.

В настоящей работе представлены расчеты зависимости пороговой интенсивности накачки возбуждения ВКР при наличии буферного газа.

Пространственно-временное изменение интенсивности ВКР и населенности уровня 2 N_2 при монохроматической накачке описывается уравнениями

$$\frac{\partial J_s(\omega_s, t, z)}{\partial z} + \frac{1}{v} \frac{\partial J_s(\omega_s, t_1, z)}{\partial t} = P_{os}(\omega_s, t, z) \quad (1)$$

$$\frac{\partial N_2(t, z)}{\partial t} = N_1 \omega_{12}(t, z) - \frac{1}{\hbar \omega_s} \int P_{os}(\omega_s, t, z) d\omega_s \quad (2)$$

$$P_{os}(\omega_s, t, z) = \gamma(\omega_s) I_L(t, z) [J_s(\omega_s, t, z) + A] \quad (3)$$

Здесь J_s - спектральная плотность интенсивности ВКР в среде, P_0 - спектральная плотность мощности, выделяемой в единице объема на частоте ω_s , $\gamma(\omega_s)$ - коэффициент усиления ВКР на частоте ω_s , рассчитанный на единичную интенсивность накачки и единичную плотность частиц на уровень 2,

$$A = \frac{\hbar \omega_s \Delta \vartheta}{2\pi \lambda_s^2},$$

где $\Delta \vartheta$ - телесный угол, в котором распространяется излучение ВКР, ω_{12} - вероятность ОС перехода 1-2.

Пусть среда длиной l располагается между плоскостями $z=0$ и $z=l$.

Сделаем замену переменной

$$t_1 = t + \frac{z_1 - z}{g}$$

и обозначим

$$J_s(\omega_s, t_1 - \frac{z_1 - z}{g}, z) = \tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z).$$

Аналогично введем функции

$$\tilde{P}_{os}(\omega_s, t_1, z); \tilde{N}_2(t_1, z); I_L(t_1, z) \text{ и } \omega_{12}(t_1, z) \quad (4)$$

Тогда система уравнений (1-3) примет вид:

$$\frac{\partial \tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z)}{\partial z} = P_{os}(\omega_s, t_1, z) \quad (5)$$

$$\frac{\partial \tilde{N}_2(t_1, z)}{\partial t_1} = N_1 \tilde{\omega}_{12}(t_1, z) - \frac{1}{\hbar \omega_s} \int \tilde{P}_{os}(\omega_s, t_1, z) d\omega_s \quad (6)$$

$$\int \tilde{P}_{os}(\omega_s, t_1, z) = \gamma(\omega_s) \tilde{I}_L(t_1, z) \tilde{N}_2(t_1, z) [\tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z) + A] \quad (7)$$

Подставляя $\tilde{P}_{os}$ из (7) в (4) и решая получающееся дифференциальное уравнение, найдем,

$$\tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z) = A[\exp(G(\omega_s, t_1, z)) - 1] \quad (8)$$

$$G(\omega_s, t_1, z) = \int_0^z \gamma(\omega_s) \tilde{N}_2(t_1, z) \tilde{I}_L(t_1, z) dz \quad (9)$$

В дальнейшем будем полагать истощение накачки малым, тогда $\tilde{I}_L(t_1, z)$ не зависит от z и можно заменить $\tilde{I}_L(t_1, z) = I_L(t_1)$, $\tilde{\omega}_{12} = \omega_{12}(t_1)$

Концентрацию атомов на уровне 1 будем считать приблизительно постоянной, $N_1 \approx N = const$. Интегрируя уравнение (6) по координате от 0 до z и с учетом (1), получим:

$$\frac{\partial N_2(t_1, z)}{\partial t_1} = N_1 \omega_{12}(t_1, z) z - \frac{1}{\hbar \omega_s} \int \tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z) d\omega_s \quad (10)$$

где

$$N_2(t_1, z) = \int_0^z \tilde{N}_2(t_1, z') dz'$$

– число атомов на уровне 2 в объеме среды от входного окна кюветы $z=0$ до плоскости $z=const$ с единичной площадью поперечного сечения. В соответствии с (9) величина G_T оказывается пропорциональной N_2 :

$$G(\omega_s, t_1, z) = \gamma(\omega_s) I_L(t_1, z) N_2(t_1, z) \quad (11)$$

Принимая, что форма линии комбинационного перехода имеет лоренцевский вид, запишем:

$$\gamma(\omega_s) = \gamma(\bar{\omega}_s) / (\omega_s - \bar{\omega}_s)^2 + (\frac{\Delta\Omega}{2})^2 \quad (12)$$

где $\bar{\omega}_s$ – центральная частота перехода, $\Delta\Omega$ – ширина перехода. Используя (12) из (8) получим приближенное выражение для интегральной интенсивности ВКР $\tilde{I}_s(t_1, z) = \int \tilde{J}_s(\omega_s, t_1, z) d\omega_s$ в виде

$$\tilde{I}_s(t_1, z) = A[\exp(G(\bar{\omega}_s, t_1, z)) - 1] \mu, \quad (13)$$

где

$$\mu = \Delta\Omega \sqrt{\pi / 4G(\bar{\omega}_s, t_1, z)}$$

при $G_T(\bar{\omega}_s, t_1, z) \gg 1$ и $\mu = \Delta\Omega / 2$ при $G(\bar{\omega}_s, t_1, z) \ll 1$ (область СКР) обычно требуются значения инкремента $G_T \sim 25-30$. При таких G_T даже небольшое относительное изменение приводит к резкому измене-

нию e^{G_T} , что касается множителя μ , то его изменение при небольших вариациях G_T вносит лишь очень малый вклад в изменение интенсивности ВКР. Поэтому даже в достаточно широкой области изменения I_s на (2-3 порядка) можно приближенно пренебречь зависимостью μ от G_T и положить в (13)

$$\mu = \Delta\Omega \sqrt{\frac{\pi}{4G_{TЭКСП}}}$$

где G_T – некоторое фиксированное значение инкремента, выбранное в соответствии с условиями эксперимента. Поскольку ширина линии ВКР

$$\partial\Omega = \Delta\Omega \sqrt{\ln 2 / G_{ЭКСП}} \text{ то } \mu = 1,06\partial\Omega.$$

Используя (13) с учетом (11) из (16) получим дифференциальное уравнение для $N_2(t_1, z)$

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_2(t_1, z)}{\partial t_1} &= N_1 \omega_{12}(t_1, z) z - \\ &- \frac{1}{\hbar \omega_s} A \mu (e^{\gamma(\bar{\omega}_s) I_L(t_1, z) N_2(t_1, z)} - 1) \end{aligned} \quad (14)$$

Имея в виду сказанное выше, мы будем полагать (14)

$$\mu = \Delta\Omega \sqrt{\frac{\pi}{4G_{ЭКСП}}} = const.$$

Это оправдано, поскольку в области малых значений N_2 , когда G_T может быть значительно меньше $G_{TЭКСП}$ I_s крайне мала и роль второго члена правой части (14) становится несущественной.

Решение (14) может быть найдено в аналитическом виде если при

$t_1 > t_0(z_1)$ $I_L(t_1, z_1) = I_L = const$, а при $t_1 \leq t_0(z_1)$, $I_L(t_1, z_1) = 0$. С помощью замены $\exp[\gamma I_L N_2(t_1, z)] = \eta(t_1, z)$, где $\gamma = \gamma(\bar{\omega}_s)$ уравнение (14) переходит в уравнение для η , которое легко решается. По функции η находится как $N_2(t_1, z)$, так и, в соответствии с (13), интенсивность ВКР $\tilde{I}_s(t_1, z) = A\mu(\eta - 1)$. Сделаем обратный переход от функции $\tilde{I}_s$ к функции I_s для чего положим $z=z_1$ и учтем, что $\tilde{I}_s(t_1, z) = I_s(t_1, z)$. Вместо t_1, z_1 в дальнейшем будем писать t, z . Для интенсивности получим следующие соотношения

$$\frac{1}{I_s(t, z)} = \frac{1}{I_s^0(t, z)} + \frac{1}{I_s^{np}(z)} \quad (15)$$

где

$$I_s^0(t, z) = A\mu[\exp(G^0(t, z) - 1)],$$

$$G^0(t, z) = \gamma N_2^0(t, z) I_L z \quad (16)$$

$$N_2^0(t, z) = N_1 \omega_{12}[t - t_0(t)]$$

– «неистощенная населенность» уровня 2 т.е. населенность, которая имела бы место при отсутствии ВКР, $I_S^{IP}(z) = \hbar \omega_s N_1 w_{12} z$ – предельная интенсивность ВКР определяемая скоростью ОС перехода атомов на уровень 2. Отметим, что величина μ в выражении для I_S^0 та же, что и в правой части (14), она определяется не величиной G^0 , а величиной $G_{ЭКСП}$ и связана с реально наблюдающейся шириной линии ВКР $\partial\Omega$. Энергия ВКР $W_s(t, z)$ прошедшая к моменту времени t через сечение z , равна

$$W_s(t, z) = W_s^{np}(t, z) \frac{1}{G^0(t, z)} [\ln(1 - e^{G^0(t, z) - G^{IP}(z)})] \quad (17)$$

где предельная энергия единицы времени

$$W_s^{np}(t, z) = I_S^{IP}(z) \sigma(t - t_0(z)),$$

σ – площадь поперечного сечения пучка ВКР, а $G^{IP}(z)$ определяется из соотношения

$$I_S^{IP}(z) = A\mu[\exp(G^{IP}(z)) - 1].$$

Учитывая, что при расстройках значительно превышающих ширину комбинационного перехода, из (17) можно получить зависимость $\xi = \frac{\Delta_{23}}{\tilde{\Delta}_{23}}$, где $\tilde{\Delta}_{23}$

определяется из соотношения $G^0(\tilde{\Delta}_{23}) = G^{np}$.

Из (17) получим

$$W_s \approx W_s^{IP} \frac{1}{G^{np}} \xi^2 \ln \left[1 + \exp(G^{np} (\frac{1}{\xi^2} - 1)) \right]$$

При $1 - |\xi| \gg \frac{1}{2G^{np}}$ получим

$$W_s = W_s^{IP} (1 - \xi^2)$$

Пусть импульс накачки имеет прямоугольную форму:

$$I_L(t, z) = I_L = const$$

при $t_0(z) < t < t_0(z) + \tau_L$ и $I_L(t, z)$ вне указанного временного интервала.

Предельная энергия $W_s^{IP} = \hbar \omega_s m \sigma I_L N^1 N_1 t$. Так как $N_1 \approx N$ и $t = \tau_L$ $W_s^{np} = \hbar \omega_s l m N N^1 I_L \tau_L$

$$W_s = \hbar \omega_s \sigma l m N N^1 I_L \tau_L \left[1 - \left(\frac{\Delta_{23}}{\tilde{\Delta}_{23}} \right)^2 \right] \quad (18)$$

В настоящей работе представлены расчеты порога ВКР зависимости от концентрации атомов буферного газа и атомов щелочных металлов, а также от частоты лазера.

РЕЗУЛЬТАТЫ ТЕОРЕТИЧЕСКОГО РАСЧЕТА

1. Расчеты пороговой интенсивности накачки ВКР.

Рассмотрим два случая: 1. Режим сильного истощения населенностей уровня 2. Она реализуется в

области малых расстроек (вблизи резонансного перехода). 2. Режим слабого истощения - она реализуется в области больших расстроек.

Пороговая мощность накачки $\hat{I}_L$ определяется из условия

$$W_s(\tau_L, I) = \hat{W}_s$$

где $\hat{W}_s$ – пороговая энергия ВКР.

а) рассмотрим пороговую зависимость ВКР от концентрации атомов буферного газа, атомов щелочных металлов и частотной расстройки при режиме сильного истощения населенности 2.

Из уравнения (18) вблизи резонанса $\Delta_{23} \rightarrow 0$, $W_s = \hbar \omega_s \sigma l m N N^1 I_L \tau_L$.

Определяя пороговую интенсивность лазера I_L условием $W_s = \hat{W}_s$ получим

$$\hat{I}_L = \frac{\hat{W}_s}{\hbar \omega_s l m N N^1 \tau_L},$$

где $\hat{W}_s$ – минимальная энергия ВКР излучения. Отсюда следует, что с увеличением концентрации буферного газа и атомов щелочных металлов порог интенсивности уменьшается (рисунок 2). Это связано с тем, что увеличение концентрации приводит к увеличению заселенности уровня 2.

Пороговая зависимость интенсивности накачки от расстройки частоты лазерного излучения Δ_{23} .

Условие $W_s = \hat{W}_s$ дает

$$\hat{W}_s = \hbar \omega_s \sigma l m N N^1 \hat{I}_L \tau_L \left[1 - \left(\frac{\Delta_{23}}{\tilde{\Delta}_{23}} \right)^2 \right]$$

Так как $\tilde{\Delta}_{23}$ пропорционально I_L $\tilde{\Delta}_{23} = k I_L$ $k = const$ и при постоянной τ_L , N^1 , N , l, m получим пороговую энергию

$$\hat{W}_s = \alpha \hat{I}_{SL} \left(1 - \frac{\Delta_{23}^2}{k^2 \hat{I}_{SL}^2} \right)$$

$$\hat{I}_{SL} = \frac{\hat{W}_s}{\alpha} + \frac{\alpha \Delta_{23}^2}{k^2 \hat{W}_s}$$

При $\Delta_{23} \rightarrow 0$, $\hat{I}_{SL} = \frac{\hat{W}_s}{\alpha}$ отсюда вблизи резонан-

са пороговая интенсивность накачки не зависит от расстройки (рисунок 3 пунктирная штрихованная область). При увеличении расстройки пороговая интенсивность накачки растет Δ_{23}^2 (не штрихованная область).

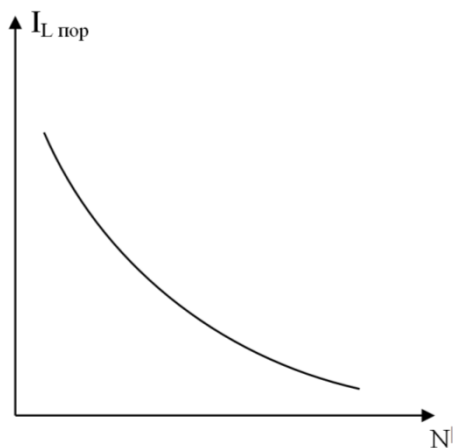


Рисунок 2. Зависимость пороговой интенсивности лазера от концентрации буферного газа

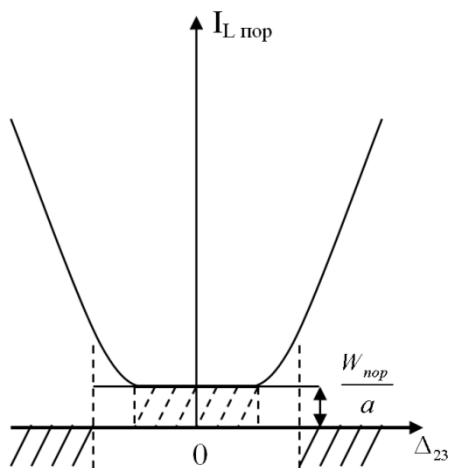


Рисунок 3. Зависимость пороговой интенсивности лазера от расстройки Δ_{23}

б). Режим слабого истощения населенностей уровня 2.

Режим слабого истощения реализуется в области больших расстроек.

В этом случае порог ВКР можно определить из (16) при постоянном τ_L , l и $N_1 \approx N$

$$G^0 = \gamma N_2^0 I_L l$$

ЛИТЕРАТУРА

1. Бимагамбетов, Т. С. Расчет порога возбуждения и энергии ИК излучения в условиях ступенчатого нерезонансного заселения исходного уровня / Т. С. Бимагамбетов, Б.А. Аканаяев // Известия АН и МН РК. Сер. физ.-мат. – 1988. - №2. - С.81-84.
2. Бимагамбетов, Т.С. Возбуждение вынужденного ИК излучения в условиях ступенчатого заселения исходного уровня при присутствии буферного газа / Т.С. Бимагамбетов // Труды Международного форума по проблемам науки, техники и образования. -2009. - Т.2, №6. - С.36-37.
3. Бимагамбетов, Т. С. Исследование оптико-столкновительного заселения резонансного уровня атома Rb. / Т.С. Бимагамбетов, В.И. Одинцов // Известия АН КазССР. Сер. физ.-мат. – 1990. - №6. -С.77-79.

Полагая $\gamma = \frac{\gamma^0}{N^I \Delta_{23}}$, где $\gamma_1 = \gamma^0 \frac{1}{N^I}$, получим

$$G^0 = \gamma^0 N_2^0 I_L l \frac{1}{N^I \Delta_{23}^2} \quad (19)$$

Учтем, что

$$N_2^0 = w_{12} N^I \tau_L = m I_L N N^I \tau_L = m I_L N N^I \tau_L \quad (20)$$

где мы положим $w_{12} = m I_L N^I$, $m = const$ подставляя значение (20) в (19) получим

$$G^0 = \gamma^0 m l \tau_L N I_L^2 \frac{1}{\Delta_{23}^2}$$

Тогда уравнение для определения пороговой интенсивности накачки примет вид,

$$\hat{G} = \gamma^0 m l \tau_L N \hat{I}_L^2 \frac{1}{\Delta_{23}^2}$$

откуда

$$\hat{I}_L = \frac{|\Delta_{23}|}{\sqrt{N}} \sqrt{\frac{\hat{G}}{\gamma_1^0 m \tau_L l}}$$

Итак, в режиме неистощенной населенности N_2 , $\hat{I}_L \sim |\Delta_{23}|$, обратно пропорционально $\sqrt{N}$ и не зависит от концентрации буферного газа. Зависимость пороговой интенсивности накачки от расстройки частоты лазерного излучения показана на рисунке 3 (сплошная штрихованная область).

Таким образом, из полученных теоретических результатов можно сделать следующие выводы:

1. В первом случае увеличение концентрации буферного газа приводит к уменьшению порога возбуждения ВКР, а во втором - не зависит.

2. Значение порога интенсивности лазера от концентрации атомов щелочных металлов при неистощенной населенности резонансного уровня 2 уменьшается медленнее, чем истощенной населенности.

3. При неистощенной населенности резонансного уровня порог возбуждения ВКР от расстройки Δ_{23} растет линейно, а неистощенной населенности не зависит от расстройки.

**БУФЕР ГАЗЫНДАҒЫ БАСТАПҚЫ ДЕҢГЕЙІ ОПТИКА – СОҚТЫҒЫСУ САЛДАРЫНАН
ҚОНЫСТАНАТЫН ЕРІКСІЗ КОМБИНАЦИОНАЛДЫҚ ШАШЫРАҒАН СӘУЛЕНІҢ ҚОЗУ
ТАБАЛДЫРЫҒЫНЫҢ ТЕОРИЯЛЫҚ ЕСЕПТЕУЛЕРІ**

Бимағамбетов Т.С.

Алматы энергетика және байланыс университеті, Алматы, Қазақстан

Ұсынылып отырған жұмыста буфер газындағы сілті металында бастапқы деңгейі оптика – соқтығысу салдарынан қоныстанатын еріксіз комбинационалдық шашыраған сәуленің қозу табалдырығы мен энергиясы зерттелген. Сәуленің пайда болу табалдырығының буфер газы мен сілті атомдарының концентрациясына және лазер сәулесінің жиілігіне байланыстылығы алынған. Берілген тәуелділіктер екі жағдайда қарастырылған: 1. Резонанс деңгейінің күшті азғындалуы. Бұл лазер жиілігінің кіші мәнінде (атомның 2-3 деңгейлерінің маңында) орындалды. 2. Әлсіз азғындалуы – ол лазер жиілігінің үлкен мәнінде. Біріншісінде сәуленің пайда болу табалдырығының мәні буфер газының концентрациясын артқанда кеміген, ал екінші жағдайда байланысты еместігі анықталған. Резонанс деңгейінің әлсіз азғындалғанда сәуленің пайда болу табалдырығы сызықты байланысты, ал күшті азғындалғанда лазер жиілігіне тәуелсіз екендігі көрсетілген.

**THEORETICAL CALCULATION OF THE THRESHOLD EXCITATION OF STIMULATED RAMAN
SCATTERING IN OPTIC - COLLISION SETTLEMENT BASELINE IN THE PRESENCE OF BUFFER GAS**

T.S. Bimagambetov

Almaty Energy and Communications University, Almaty, Kazakhstan

In this paper we studied theoretically the threshold and energy stimulated Raman scattering at the optic – collision level in the settlement of the original alkali metals in presence of buffer gas. The dependence of the threshold laser intensity on the concentration of the buffer gas and the alkali metal atoms, as well as the laser frequency. Two cases are considered: 1. Regime of strong depletion of the population of level 2. It is implemented in the region of small detunings (in the vicinity of the atomic transition 2-3). 2. Weak-exhaustion - it is implemented in the region of large detuning. It was established that in the first case, the threshold of stimulated Raman with increasing concentration of the buffer gas decreases, while the second - does not. With a weak depopulation resonance level excitation threshold Raman detuning increases linearly, while for heavily depleted the population does not depend on the detuning.

СПИСОК АВТОРОВ

- Сухоруков И.А., 103
Бакланов В.В., 82, 91
Бактибаев А.Н., 116
Бимагамбетов Т.С., 150
Брянцева Н.В., 47
Верещак М.Ф., 103
Генова С.В., 71
Гныря В.С., 91
Горин Н.В., 91
Горлачев И.Д., 123
Гусев М.Н., 144
Дегтярев В.В., 123
Дерявко И.И., 82, 91
Дмитропавленко В.Н., 5, 59
Дроздов А.В., 71
Жанкадамова А.М., 103
Иванов И.А., 123
Кабдыракова А.М., 28
Кадыржанов К.К., 103
Каширский В.В., 20
Кенжин Е.А., 91
Колбаенков А.Н., 91
Колокольцов М.В., 98
Коровикова Т.В., 5
Коровина О.Ю., 20, 59
Коянбаев Е.Т., 82
Кретинин А.А., 98
Кукушкин И.М., 82
Кундузбаева А.Е., 28
Ларионова Н.В., 37
Лукашенко С.Н., 20, 28, 37, 47, 71
Лысухин С.Н., 123
Ляхова О.Н., 37
Макаров Д.А., 98
Максимкин О.П., 109, 116, 144
Манакowa И.А., 103
Мережко М.С., 109
Мустафина Е.В., 5, 47, 59
Осинцев А.Ю., 5, 47, 59
Павшук В.А., 91
Пазылбек С.А., 116
Пеньков Ф.М., 123
Рахашев Б.К., 109
Романенко В.В., 71
Рубан С.В., 109
Русаков В.С., 103
Русакова А.В., 144
Русинова Л.А., 71
Саблук В.В., 82
Садыков А.Д., 98
Сергеева Л.С., 103
Субботин С.Б., 71
Тухватулин Ш.Т., 91
Ударцев С.В., 82
Черепнин Ю.С., 91
Чернова Л.М., 71
Чернядьев В.В., 91
Шипилов Д.В., 98
Шумайлова О.Н., 98
Яковенко Ю.Ю., 5

ТРЕБОВАНИЯ К ОФОРМЛЕНИЮ СТАТЕЙ

Статьи предоставляются в электронном виде (на CD, DVD диске или по электронной почте присоединенным (attachment) файлом) в формате MS WORD и печатной копии.

Отдельным файлом предоставляются сведения об авторах: ФИО, организация и ее полный адрес, должность, ученая степень, телефон, e-mail.

Текст печатается на листах формата А4 (210×297 мм) с полями: сверху 30 мм; снизу 30 мм; слева 20 мм; справа 20 мм, на принтере с высоким разрешением (300-600 dpi). Горизонтальное расположение листов не допускается.

Используются шрифт Times New Roman высотой 10 пунктов для обычного текста и 12 пунктов для заголовков. Пожалуйста, для заголовков используйте стили (Заголовок 1, 2...) и не используйте их для обычного текста, таблиц и подписанных подписей.

Текст печатается через одинарный междустрочный интервал, между абзацами – один пустой абзац или интервал перед абзацем 12 пунктов.

В левом верхнем углу должен быть указан индекс УДК. Название статьи печатается ниже заглавными буквами. Через 3 интервала после названия, печатаются фамилии, имена, отчества авторов и полное наименование, город и страна местонахождения организации, которую они представляют. После этого, отступив 2 пустых абзаца или с интервалом перед абзацем 24 пункта, печатается основной текст.

Максимально допустимый объем статьи – 10 страниц.

При написании статей необходимо придерживаться следующих требований:

- Статья должна содержать аннотации на казахском, английском и русском языках (130-150 слов) с указанием названия статьи, фамилии, имени, отчества авторов и полного названия организации, города и страны местонахождения, которую они представляют;
- Ссылки на литературные источники даются в тексте статьи цифрами в квадратных [1] скобках по мере упоминания. Список литературы следует привести по ГОСТу 7.1-2003;
- Иллюстрации (графики, схемы, диаграммы) должны быть выполнены на компьютере (ширина рисунка 8 или 14 см), либо в виде четких чертежей, выполненных тушью на белом листе формата А4. Особое внимание обратите на надписи на рисунке – они должны быть различимы при уменьшении до указанных выше размеров. На обороте рисунка проставляется его номер. В рукописном варианте на полях указывается место размещения рисунка. Рисунки должны быть представлены отдельно в одном из форматов *.tif, *.gif, *.png, *.jpg, *.wmf с разрешениями 600 dpi.
- Математические формулы в тексте должны быть набраны как объект Microsoft Equation или MathType. Химические формулы и мелкие рисунки в тексте должны быть вставлены как объекты Рисунок Microsoft Word. Следует нумеровать лишь те формулы, на которые имеются ссылки.

К статье прилагаются следующие документы:

- рецензия высококвалифицированного специалиста (доктора наук) в соответствующей отрасли науки;
- выписка из протокола заседания кафедры или методического совета с рекомендацией к печати;
- акт экспертизы (экспертное заключение);
- на отдельном листе автор сообщает сведения о себе: фамилия, имя, отчество, ученая степень, должность, кафедра и указывает служебный и домашний телефоны, адрес электронной почты.

Текст должен быть тщательным образом выверен и отредактирован. В конце статья должна быть подписана автором с указанием домашнего адреса и номеров служебного и домашнего телефонов, адрес электронной почты.

Статьи, оформление которых не соответствует указанным требованиям, к публикации не допускаются.

Ответственный секретарь д.т.н. М.К. Мукушева
тел. (722-51) 2-33-35, E-mail: MUKUSHEVA@NNC.KZ

Технический редактор А.Г. Кислухин
тел. (722-51) 2-33-33, E-mail: KISLUHIN@NNC.KZ

Адрес редакции: 071100, Казахстан, г. Курчатов, ул. Тәуелсіздік, 6.
<http://www.nnc.kz/vestnik>

© Редакция сборника «Вестник НЯЦ РК», 2001.

Регистрационное свидетельство №1203-Ж от 15.04.2000г.
Выдано Министерством культуры, информации и общественного согласия Республики Казахстан

Тираж 300 экз.

Выпуск набран и отпечатан в типографии
Национального ядерного центра Республики Казахстан
071100, Казахстан, г. Курчатов, ул. Тәуелсіздік, 6.

