



ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН



Вестник НЯЦ РК

ПЕРИОДИЧЕСКИЙ НАУЧНО-ТЕХНИЧЕСКИЙ ЖУРНАЛ НАЦИОНАЛЬНОГО ЯДЕРНОГО ЦЕНТРА РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

ВЫПУСК 2(82), ИЮНЬ 2020

Издается с января 2000 г.

ГЛАВНЫЙ РЕДАКТОР – д.ф.-м.н., профессор БАТЫРБЕКОВ Э.Г.

РЕДАКЦИОННАЯ КОЛЛЕГИЯ: д.ф.-м.н. СКАКОВ М.К. – заместитель главного редактора, к.б.н. АЙДАРХАНОВ А.О., д.ф.-м.н. БУРТЕБАЕВ Н.Т., доктор инженерии ВИЕЛЕБА В.К. (Польша), к.ф.-м.н. ВИТЮК В.А., к.ф.-м.н. ВУРИМ А.Д., д.т.н. ГРАДОБОЕВ А.В. (Россия), д.ф.-м.н. МАКСИМКИН О.П., д.ф.-м.н. МИХАЙЛОВА Н.Н., к.г.-м.н. ПОДГОРНАЯ Л.Е., д.ф.-м.н. СОЛОДУХИН В.П., д.ф.-м.н. ТАЖИБАЕВА И.Л., профессор ФУДЖИ-Е (Япония)

ҚР ҰЯО Жаршысы

ҚАЗАҚСТАН РЕСПУБЛИКАСЫ ҰЛТТЫҚ ЯДРОЛЫҚ ОРТАЛЫҒЫНЫҢ МЕРЗІМДІК ҒЫЛЫМИ-ТЕХНИКАЛЫҚ ЖУРНАЛЫ

2(82) ШЫҒАРЫМ, МАУСЫМ, 2020 ЖЫЛ

NNC RK Bulletin

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

ISSUE 2(82), JUNE 2020

Периодический научно-технический журнал «Вестник НЯЦ РК» входит в перечень научных изданий, рекомендуемых Комитетом по контролю в сфере образования и науки Министерства образования и науки Республики Казахстан для публикации основных результатов научной деятельности по следующим направлениям:

- Естественные науки;
- Науки о Земле и географические науки.

СОДЕРЖАНИЕ

РАДИАЦИОННОЕ ОБСЛЕДОВАНИЕ ТЕРРИТОРИИ В РАЙОНЕ ПЛОЩАДКИ «БАЛАПАН» Кривицкий П.Е., Айдарханов А.О., Умаров М.А., Мустафина Е.В., Абишева М.Т., Скопченко М.Е
ИЗУЧЕНИЕ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ К ПРОТОННОМУ ОБЛУЧЕНИЮ НИТРИДНЫХ КЕРАМИК Козловский А.Л
REVIEW: PHOTOLUMINESCENCE PROPERTIES OF UNDOPED AND Eu³⁺ DOPED ZnS NANOMATERIALS L.R. Gahramanli
ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРНО-ФАЗОВОГО СОСТОЯНИЯ АЗОТСОДЕРЖАЩИХ ПОКРЫТИЙ ДИОКСИДА ТИТАНА, СИНТЕЗИРОВАННЫХ МЕТОДОМ РЕАКТИВНОГО МАГНЕТРОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ
Аубакирова Д.М., Пичугин В.Ф., Ердыбаева Н.К., Сагдолдина Ж.Б
Рахадилов Б.К.,Сагдолдина Ж.Б., Баятанова Л.Б., Рахымжанова К.Б., Сәндібек А.Қ
РЕАКТОР СИНТЕЗА НА ВСТРЕЧНЫХ ПУЧКАХ Котов В.М
МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Тимонова Л.В., Раимканова А.М
ОЦЕНКА ЦЕЛОСТНОСТИ ЗАЩИТНЫХ БАРЬЕРОВ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНИЛИЩА ОЯТ РЕАКТОРА БН-350 Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Айдарханов А.О., Абдигамитов Б.А
ОСОБЕННОСТИ РАСЧЕТА МОЩНОСТИ ЭЛЕМЕНТОВ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ НА ИГР Жанболатов О.М., Иркимбеков Р.А
ВЛИЯНИЕ ИТЕРАЦИОННЫХ АЛГОРИТМОВ НА КАЧЕСТВО ИЗОБРАЖЕНИЯ И ПОЛУКОЛИЧЕС- ТВЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ НАКОПЛЕНИЯ РФП Емельяненко Е.В., Тарутин И.Г., Дзюбан А.В. 61
ВЛИЯНИЕ СПОСОБА ФОРМИРОВАНИЯ ДЕФЕКТОВ НА СВОЙСТВА ПРОТОННЫХ ПРОВОДНИ- КОВ НА ОСНОВЕ СКАНДАТА ЛАНТАНА Хромушин И.В., Аксенова Т.И
ПРАКТИЧЕСКИЕ СПОСОБЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ В РЕЖИМЕ ИМПУЛЬСНОГО ИЗМЕНЕНИЯ МОЩНОСТИ Витюк В.А., Вурим А.Д., Витюк Г.А
СОДЕРЖАНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В ГРИБАХ В ЗОНЕ ВЛИЯНИЯ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА
ОЦЕНКА «ФОНОВЫХ» КОНЦЕНТРАЦИЙ ЕСТЕСТВЕННЫХ И ИСКУССТВЕННЫХ РАДИО- НУКЛИДОВ В ВОДЕ ВОДНЫХ ОБЪЕКТОВ ВОСТОЧНО-КАЗАХСТАНСКОЙ ОБЛАСТИ Айдарханова А.К., Кумисханова С.Б., Ляхова О.Н., Тлеуканов Е.Н.

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНОГО МЕТОДА ПОЛУЧЕНИЯ СЧЕТНОГО ОБРАЗЦА ДЛЯ АЛЬФА-СПЕКТРО МЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ	D-
Зверева И.О., Каширский В.В.	100
МЕТОДИКА РАСПОЗНАВАНИЯ СЕЙСМИЧЕСКИХ СОБЫТИЙ ПО КОМПЛЕКСУ ИНФРАЗВУКО ВЫХ И СЕЙСМИЧЕСКИХ ДАННЫХ	•
Смирнов А.А., Мукамбаев А.С., Михайлова Н.Н.	105
КАРЬЕРНЫЕ И СТРОИТЕЛЬНЫЕ ВЗРЫВЫ В РАЙОНЕ ГОРОДА АЛМАТЫ КАК ЭТАЛОННЫЕ СОБЫТИЯ В ЗАДАЧАХ СЕЙСМИЧЕСКОГО МОНИТОРИНГА Аристова И.Л., Соколова И.Н	112
ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФОНОВОЙ ЧАСТОТЫ НЕСТАБИЛЬНЫХ АБЕРРАЦИЙ ДЛЯ НУЛЕВОЙ ТОЧКИ ДОЗЫ В РАЗЛИЧНЫХ РЕГИОНАХ КАЗАХСТАНА Кенжина Л.Б., Мамырбаева А.Н., Кенесарина А.О.	119
ИССЛЕДОВАНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ЕСТЕСТВЕННЫХ И ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОЗДУХЕ СТЕПНОЙ ЗОНЫ РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН Турченко Д.В., Кабдыракова А.М., Круглыхин А.А.	128
РАЗРАБОТКА СИСТЕМЫ РАДИОНУКЛИДНОГО МОНИТОРИНГА ЯДЕРНЫХ СОБЫТИЙ И РАДИАЦИОННЫХ АВАРИЙ В НЯЦ РК Турченко Д.В., Ляхова О.Н., Круглыхин А.А	134
РАСЧЕТ ТЕПЛОВОГО СОСТОЯНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ ИСПЫТАНІ В РЕАКТОРЕ ИВГ.1М Сураев А.С., Иркимбеков Р.А., Понкратов Ю.В	ЛЙ 144
ПЕШЕХОДНАЯ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКАЯ СЪЕМКА КАК ИНСТРУМЕНТ ОЦЕНКИ РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ТЕРРИТОРИЙ Бакланова Ю.В. Криринкий П.Е. Умаров М.А. Мустафина Е.В. Божко В.В. Монаенко В.Н.	154
ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ БИОЛОГИЧЕСКИХ ОСОБЕННОСТЕЙ РАСТЕНИЙ НА СОДЕРЖАНИЕ ОТДЕЛЬНЫХ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ И РАДИОНУКЛИДОВ Ларионова Н.В., Кожаханов Т.Е., Иванова А.Р.	160
ОЦЕНКА СОСТОЯНИЯ ОЯТ РЕАКТОРА БН-350 В РЕЖИМЕ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНЕНИЯ Кривицкий П.Е., Мустафина Е.В., Прозорова И.В., Прозоров А.А., Чернов А.А.	167
ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ПРОТОНОВ С ЭНЕРГИЕЙ 7 МэВ С МЕДЬЮ Мукан Ж., Жолдыбаев Т.К., Садыков Б.М., Керимкулов Ж.К., Насурлла М., Усабаева Г., Алиева Г., Темір Ш.	171
СПИСОК АВТОРОВ	176

РАДИАЦИОННОЕ ОБСЛЕДОВАНИЕ ТЕРРИТОРИИ В РАЙОНЕ ПЛОЩАДКИ «БАЛАПАН»

Кривицкий П.Е., Айдарханов А.О., Умаров М.А., Мустафина Е.В., Абишева М.Т., Скопченко М.Е.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье представлены результаты радиационного обследования территории площадью 1005 км², расположенной в районе площадки «Балапан». Основанием для обследования послужили ранее проведенные исследования примыкающей к площадке «Балапан» территории, которые выявили масштабную область радиоактивного загрязнения почвы ²⁴¹Ат. Удельная активность ²⁴¹Ат в почве достигает значений ~200 Бк/кг.

Результат исследования этой области показал, что столь масштабное загрязнение имеет форму «следов» радиоактивных выпадений, предположительно вызванных атмосферными испытаниями на площадке «Опытное поле». Особенностью данного загрязнения является небольшое содержание продуктов деления и активации ядерного взрыва, соизмеримое с фоном глобальных выпадений, что нехарактерно для «следов» ядерных выпадений от наземных ядерных испытаний.

Ключевые слова: Семипалатинский испытательный полигон (СИП), площадка «Балапан», ²⁴¹Am, площадное радиоактивное загрязнение.

Введение

При проведении работ по экологическому обследованию части восточной территории СИП, включающей территорию, прилегающую к площадке «Балапан», выявлена масштабная область (более 50% обследуемой территории, около 1000 км²) с повышенными значениями удельной активности ²⁴¹Am (рисунок 1, а). При этом концентрация ¹³⁷Cs находится на уровне фона глобальных выпадений (рисунок 1, б).

Площадка «Балапан» в основном использовалась для проведения подземных ядерных испытаний в вертикальных выработках скважин, радиоактивное загрязнение от которых в большинстве случаев ограничивается территорией, прилегающей к устьям скважин (локализованные мелкоочаговые участки). Однако в ряде случаев, во время проведения испытаний, радиоактивное загрязнение выходило не только за пределы испытательной площадки, но и за пределы полигона. Примером может послужить испытание в скважине 1004, вследствие которого было образовано «Атомное озеро», или испытание в скважине 1366, ядерный взрыв в которой был осуществлен в штатном режиме, но радиоактивные инертные газы (РИГ) распространились на расстояние до 140 км от места взрыва и прошли над поселком Чаган [1, 2].

В соответствии с этим, помимо наиболее вероятного источника, которым являются атмосферные ядерные испытания на площадке «Опытное поле», возможен вариант с образованием радиоактивного загрязнения, вследствие взрывов неполного камуфлета на самой площадке «Балапан». Для установления истинного источника радиоактивного загрязнения проведено обследование участка площадью 1005 км², расположенного между площадками «Опытное поле» и «Балапан» (рисунок 2).



Рисунок 1. Распределение удельной активности ²⁴¹ Am (a) и ¹³⁷Cs (б) на обследованной территории



Рисунок 2. Обзорная карта Семипалатинского испытательного полигона и обследуемой территории

На обзорной карте также рассмотрены возможные следы радиоактивных выпадений от атмосферных ядерных испытаний на площадке «Опытное поле» [2]. На основании исторических данных, на исследуемую территорию могут заходить как минимум 7 следов радиоактивных выпадений от атмосферных испытаний, которые проводились в период с 1953 по 1962 гг. В 3 случаях из 7 мощность ядерного испытания превышала 10 кт (испытания 23.08.53, 16.03.56, 24.08.56), что в условиях атмосферного испытания могло привести к радиоактивному загрязнению территории, прилегающей к площадке «Опытное поле».

Материалы и методы исследования

Полевые исследовательские работы. Радиологическое обследование территории выполнено по сети 1×1 км (всего 998 точек) и включало в себя точечный отбор проб почвы на глубину 5 см и измерения радиационных параметров (мощность эквивалентной дозы (МЭД) и плотность потока β -частиц). Выбранная сеть 1×1 км позволяет выявить обширные области радиоактивного загрязнения. К такому типу радиоактивного загрязнения относятся следы радиоактивных выпадений от наземных ядерных испытаний, нештатных радиационных ситуаций и экскавационных испытаний. Определение радионуклидного состава. Радионуклидный состав подготовленных проб определялся методом инструментальной гамма-, бета- и альфаспектрометрии.

Для определения удельной активности ²⁴¹Am, ¹³⁷Сѕ и ¹⁵²Еи проводились спектрометрические измерения с использованием гамма-спектрометров производства фирмы ORTEC, в состав которых входили: полупроводниковый детектор серии GEM и цифровой анализатор спектров digiDART. Измерения проводились в соответствии с методикой выполнения измерений на гамма-спектрометре № 5.06.001.98 РК [3]. В качестве измерительных контейнеров использовались пластиковые емкости в форме прямого цилиндра диаметром 94 мм, высота образца варьировалась в зависимости от массы. Масса навесок составляла от 500 до 1000 г. Время экспозиции составляло не менее 30 мин. Определение ²⁴¹Ат проводилось гамма-спектрометрическим методом по линии 59,5 кэВ, ¹³⁷Ся – по линии 662 кэВ.

Для определения ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu проводились спектрометрические измерения с предварительным радиохимическим разложением. Для определения содержания ⁹⁰Sr подготовка образца заключалась в просеивании пробы почвы с последующим отбором навески и озолением. Озоленная навеска почвы, обрабатывалась, при нагревании, 6М раствором HCl (выщелачивалась в 6М HCl). Полученный солянокислый фильтрат использовался для концентрирования и дальнейшего выделения изотопов стронция путем осаждения различных носителей. Активность ⁹⁰Sr определялась по его дочернему радионуклиду ⁹⁰Y. Измерения активности подготовленного спектрометрического источника проводилось на жидко-сцинтилляционном спектрометре *TRI-CARB 2910TR* [4].

Для определения содержания ²³⁹⁺²⁴⁰Pu подготовка образца заключалась в просеивании пробы почвы с последующим отбором навески и прокаливанием. Прокаленная навеска почвы, после внесения трассера, разлагалась концентрированными растворами кислот (HF, HNO₃). Для концентрирования, очистки и выделения изотопов плутония использовали сильноосновный анионит AB 17×8. Спектрометрический источник подготавливали путем электролитического осаждения изотопов плутония на стальную пластину при силе тока 1,4 A в течение 1 часа. Измерения активности подготовленного спектрометрического источника проводилось на α-спектрометре *CANBERRA* [4].

Результаты и их обсуждение

Основными долгоживущими техногенными радионуклидами при ядерных испытаниях являются изотопы Pu и ²⁴¹Am (непрореагировавшее ядерное топливо и его дочерний продукт), ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr (продукты деления ядерного топлива) и ¹⁵²Eu (продукт нейтронной активации). По результатам лабораторных работ установлено, что удельная активность ¹⁵²Eu в подавляющем числе случаев находится ниже предела обнаружения используемой аппаратуры.

Характер площадного пространственного распределения радиоактивного загрязнения изотопами Ри и ²⁴¹Ат

Диапазон значений удельной активности в почве составил: для ²⁴¹Am – от 0,3 до 150 Бк/кг, при среднем значении 13 Бк/кг, для ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – от 0,8 до 620 Бк/кг, при среднем значении 77 Бк/кг. Для примера среднее содержание техногенных радионуклидов северной территории СИП, которая считается условно чистой, составляет для ²⁴¹Am ~1 Бк/кг, для ²³⁹⁺²⁴⁰Pu ~5 Бк/кг [5].

Для оценки характера загрязнения построена карта площадного распределения ²⁴¹Ат (рисунок 3).

Анализируя полученные данные, можно выделить 3 участка радиоактивного загрязнения: 1) южный; 2) центральный; 3) северный.

Основываясь на значениях удельной активности ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am определено, что концентрация данных радионуклидов для 2 и 3 участков снижается с северо-запада на юго-восток, что свидетельствует в пользу предположения об атмосферных ядерных испытаниях на площадке «Опытное поле». В отношении 1 участка нет возможности определить полную картину, так как исследуемая территория не захватывает его целиком.



Рисунок 3. Характер площадного распределения ²⁴¹Ат в почве исследуемой территории

Характер площадного пространственного распределения радиоактивного загрязнения – ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr

Диапазон значений удельной активности в почве составил: для 137 Cs – от 0,6 до 300 Бк/кг, при среднем значении 22 Бк/кг, для 90 Sr – от 8 до 310 Бк/кг, при среднем значении 36 Бк/кг. Для примера среднее содержание техногенных радионуклидов северной территории СИП, которая считается условно чистой, составляет для 137 Cs ~18 Бк/кг, для 90 Sr ~12 Бк/кг [5].

Для оценки характера площадного распределения продуктов деления ядерных испытаний построена карта площадного распределения ¹³⁷Cs (рисунок 4).



Рисунок 4. Характер площадного распределения ¹³⁷Сs в почве исследуемой территории

Анализируя полученные данные, визуально определяется 2 участка радиоактивных выпадений, которые совпадают с 1 и 2 участком по ²⁴¹Am: 1) южный; 2) центральный.

Основываясь на значениях удельной активности ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs на 2 участке радиоактивных выпадений сложно установить направление движения радиоактивного облака, так как максимальная концентрация по обоим радионуклидам находится в центральной части участка следа. В отношении 1 участка максимальная концентрация по обоим радионуклидам регистрируется в южной части, но так как исследуемая территория не захватывает след целиком, нет возможности определить полную картину. Стоит от-

дельно отметить, что 2 участок имеет крайне небольшое содержание по 90 Sr и 137 Cs, иногда граничащее с концентрациями, соизмеримыми с фоном глобальных выпадений для СИП, а в случае 3 участка, установленного по $^{239+240}$ Pu и 241 Am, численные значения 90 Sr и 137 Cs и вовсе отсутствуют, что не совсем характерно для типичных атмосферных ядерных испытаний.

Резюмируя анализ данных по соотношениям ²³⁹⁺²⁴⁰Ри к ²⁴¹Ат и ⁹⁰Sr к ¹³⁷Cs можно сделать вывод, что все 3 участка радиоактивных выпадений, выявленные на исследуемой территории, относятся к разным ядерным испытаниям и вероятней всего вызваны атмосферными ядерными испытаниями на площадке «Опытное поле». Для 2 и 3 участков в пользу этого говорит то, что концентрация ²³⁹⁺²⁴⁰Pu и ²⁴¹Am снижается с северо-запада на юго-восток. В отношении 1 участка можно сделать предположение о принадлежности данного радиоактивного загрязнения к испытаниям на «Опытном поле» в связи с тем, что при проецировании следа радиоактивных выпадений в юго-восточную сторону радиоактивное загрязнение проходит южнее площадки «Балапан», что исключает его принадлежность к испытаниям на данной площадке.

Заключение

Произведено радиационное обследование территории площадью 1005 км², расположенной между площадками «Опытное поле» и «Балапан». По полученным данным можно отметить повышенные концентрации основных техногенных радионуклидов (²⁴¹Am, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr) в почве исследуемой территории.

На обследуемой территории имеется как минимум 3 различных следа радиоактивных выпадений, предположительно образованные при проведении испытаний на площадке «Опытное поле»:

- южный след;
- 2) центральный след;
- 3) северный след.

Установлено, что центральный след имеет крайне небольшое содержание по 90 Sr и 137 Cs, иногда граничащее с концентрациями, соизмеримыми с фоном глобальных выпадений для СИП. Северный след установлен только по $^{239+240}$ Pu и 241 Am, численные значения 90 Sr и 137 Cs отсутствуют, что не совсем характерно для типичных атмосферных ядерных испытаний. На южном следе регистрируются значимые концентрации по всем 4 радионуклидам.

Литература

- 1. Ядерные испытания в СССР. Цели. Общие характеристики. Организация ядерных испытаний. Первые ядерные испытания / состав ред. И. А. Андрюшин, В. В. Богдан, С. А. Зеленцев. Т.1. Саров: РФЯЦ ВНИИЭФ.
- 2. Ядерные испытания СССР: Современное радиоэкологическое состояние полигонов / под рук. Л.А. Логачева М.: ИздАТ, 2002. 652 с. ISBN 5-86656-135-2.
- 3. Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика измерений на гамма-спектрометрах с использованием программного обеспечения «SpectraLine». Введ. 2004-08-26. Рег. № КZ.07.00.00303-2004 М.: РГП «Казахский институт метрологии»., 2004.
- Методика определения содержания искусственных радионуклидов плутония (239+240), стронция 90 в объектах окружающей среды (почвах, грунтах, донных отложениях и растениях) – Введ. 2010-12-01. – Рег. № 43151.4Б207/01.00294-2010 – М.: НПО ВНИИФТРИ.
- Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Выпуск 1. Издание 2. Радиоэкологическое состояние «северной» части территории Семипалатинского испытательного полигона. Институт радиационной безопасности и экологии НЯЦ РК / под рук. Лукашенко С. Н. – Павлодар: Дом печати, 2011. – 296 с. – ISBN 978 601 7112-38-7.

«БАЛАПАН» АЛАҢЫНЫҢ АУДАНЫНДАҒЫ АУМАҚТЫ РАДИАЦИЯЛЫҚ ЗЕРТТЕУ

П.Е. Кривицкий, А.О. Айдарханов, М.А. Умаров, Е.В. Мустафина, М.Т. Абишева, М.Е. Скопченко

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Бұл мақалада, «Балапан» алаңының аумағында орналасқан, ауқымы 1005 км² болатын аумақты радиациялық зерттеу нәтижелері келтірілген. «Балапан» алаңына жақын жатқан аумақта бұдан бұрын өткізілген зерттеулер, топырақтың ²⁴¹Ат радиоактивті ластануының масштабын айқындайтын зерттеулерге негіз болады. Топырақтағы ²⁴¹Ат меншікті белсенділігі ~ 200 Бк/кг дейінгі мәнге жетеді.

Бұл аумақтағы зерттеулердің нәтижелерінен, соншалық масштабты ластануы, болжаммен «Тәжірибе даласы» алаңындағы атмосфералық сынақтардан туындаған радиоактивті түсу «іздерінің» пішіні бар екенін көрсетті. Аталған ластанудың ерекшелігі бөліну өнімдерінің кішігірім құрамы мен ядролық сынақтың белсендендірілуі болып табылады, ол ғаламдық түсулердің фонына тең, бұл жерүсті ядролық жарылыстардан түскен ядролық түсу «іздеріне» тән емес.

Кілт сөздер: Семей сынақ полигоны (ССП), «Балапан» алаңы, ²⁴¹Ат, алаңдық радиоактивті ластану.

RADIATION SURVEY IN THE VICINITY OF "BALAPAN" SITE

P.E. Krivitskiy, A.O. Aidarkhanov, M.A. Umarov, Ye.V. Mustafina, M.T. Abisheva, M.Ye. Skopchenko

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article provides results of the radiation survey of a 1005 km² area in the vicinity of "Balapan" site. Earlier research into the area adjacent to "Balapan" site served as a ground for the survey thereby revealing a large-scale area of soil contamination with ²⁴¹Am. ²⁴¹Am activity concentration in soil reaches values of ~200 Bq/kg.

The research result showed that such a large-scale contamination is shaped as fallout "plumes" presumably caused by atmospheric tests on the "Experimental Field" ground. A feature of this contamination is a low content of fission and nuclear activation products commensurable with the global fallout background, which is uncharacteristic of nuclear fallout "plumes" formed by aboveground nuclear tests.

Keywords: Semipalatinsk Test Site (STS), "Balapan" site, ²⁴¹Am, radioactive areal contamination.

УДК 539.23; 539.216.1

ИЗУЧЕНИЕ РАДИАЦИОННОЙ СТОЙКОСТИ К ПРОТОННОМУ ОБЛУЧЕНИЮ НИТРИДНЫХ КЕРАМИК

1,2) Козловский А.Л.

¹⁾ Евразийский национальный университет им. Л.Н. Гумилева, Нур-Султан, Казахстан ²⁾ Институт ядерной физики, Алматы, Казахстан

Работа посвящена представлению результатов исследования процессов дефектообразования, возникающими в результате облучения протонами с энергией 1,5 МэВ и дозами 1×10^{15} , 1×10^{16} , 1×10^{17} ион/см² в керамиках на основе нитрида алюминия. Выбор нитридных керамик обусловлен возможностью применения их в качестве основы для конструкционных материалов ядерной энергетики. В ходе проведенных исследований установлено, что при дозах облучения $1 \times 10^{15} - 1 \times 10^{16}$ ион/см², керамики показали высокую степень устойчивости структурных свойств к дефектообразованию и искажению, однако увеличение дозы облучения до 1×10^{17} ион/см² приводит к существенному увеличению искажений кристаллической структуры и возникновению разупорядочений, обусловленных эффектов накопления точечных дефектов и дислокаций в структуре.

Введение

Одним из перспективных применений нитридных керамик является использование их в качестве конструкционных материалов для реакторов нового поколения Gen-IV, которые рассчитаны на работу при высоких температурах (500-700 °C) с применением агрессивных теплоносителей, таких как жидкие металлы, расплавы солей и т.д. [1-5]. При этом одной из важных отличительных особенностей нитридных материалов от нержавеющих сталей или карбидных керамик является возможность их применения в условиях близких к экстремальным, таких как воздействие высокого радиационного фона, больших температур, сильноконцентрированных кислотных и щелочных растворов и т.д. При этом основные реакторные узлы должны выдерживать дозовые нагрузки в 50-200 с.н.а. с сохранением рабочих характеристик в пределах допустимых норм [4-8]. В большинстве случаев повреждение материалов происходит за счет накопления радиационных дефектов в приповерхностном слое, который подвергается наибольшему воздействию не только со стороны ионизирующего излучения, но и со стороны среды теплоносителя, которая может также оказывать существенное влияние на изменение свойств материала. При этом в случае соприкосновения материала с жидким или газообразным теплоносителем, огромную роль играет морфология поверхности, дефективность которой может привести к ускоренному проникновению ионов водорода или гелия из теплоносителя в микротрещины с последующим его накоплением в структуре [9-13]. Также накопление водорода или гелия и последующая за этим эволюция структурных дефектов происходит в результате взаимодействия нейтронов с материалом, результатом которого могут являться ядерные реакции с образованием конечного продукта гелия или водорода. Ввиду вышесказанного, отдельного внимания требует вопрос, посвященный изучению процессов дефектообразования и наводораживания, а также последующая эволюция и реакция изменений

физико-химических и прочностных свойств нитридных керамик применяемых в качестве конструкционных материалов для ядерной и термоядерной энергетики [12–15].

Экспериментальная часть

В качестве объекта исследования были выбраны коммерческие поликристаллические керамики на основе нитрида алюминия (AlN) стабилизированные оксидом алюминия (Al₂O₃). Процентное содержание стабилизирующей фазы в структуре керамик составляет не более 4 %, причем распределение стабилизирующей фазы в структуре керамик изотропно по всему объему.

Моделирование изменения структурных особенностей, а также процессов наводораживания в структуре приповерхностного слоя нитридных керамик проводилось путем облучения протонами с энергией 1,5 МэВ с использованием электростатического ускорителя УКП-2-1 (Алматы, Казахстан). Дозы облучения составили 1×10¹⁵, 1×10¹⁶, 1×10¹⁷ ион/см².

Оценка изменения структурных параметров, а также влияния облучения на деформацию и искажение кристаллической структуры проводилась с применением метода рентгеновской дифракции.

Динамика изменения механических свойств нитридных керамик до и после облучения определялась с использованием испытаний на износостойкость при нагрузке 200 Н при количестве циклов 20 000.

Результаты и обсуждение

На рисунке 1 представлены рентгеновские дифрактограммы, которые отражают изменение структурных свойств облученного слоя толщиной 20 мкм. Условия рентгеновской съемки спектров подбирались таким образом, что захватываемая область соответствовала глубине проникновения рентгеновских лучей только в облученную область, тем самым отражая структурные изменения поверхностного слоя, который подвергся облучению. Общий характер изменения рентгеновских дифрактограмм образцов до и после облучения не отразил сильных структурных



Рисунок 1. Рентгеновские дифрактограммы исследуемых керамик до и после облучения

изменений, связанных с возникновением новых дифракционных пиков, а также не привел к резкому снижению или сильному искажению формы наблюдаемых дифракционных линий, что свидетельствует о высокой степени устойчивости нитридных керамик к облучению протонами и последующей эволюции пострадиационных дефектов, возникающих в структуре.

Согласно гексагональному типу структуры нитридных керамик изменение интенсивностей и положения трех основных дифракционных рефлексов (100), (002), (101) отвечает за изменение параметров кристаллической решетки а и с, где изменение рефлексов (100) и (101) характерно для деформационных процессов вдоль оси кристаллической решетки а, изменение рефлекса (002) характерно для деформационных процессов вдоль оси с. При этом согласно представленным данным, увеличение дозы облучения приводит к большему вращению зерен вдоль ориентационного направления (002), нежели вдоль направлений (100) и (101), о чем свидетельствует изменение интенсивностей дифракционных линий представленных на рисунке 1. При этом согласно анализу величины размеров кристаллитов до и после облучения, процессов рекристаллизации или существенного изменения размеров зерен не наблюдается. Величина размеров зерен до и после облучения составляет примерно 102–110±5 нм.

Изменение ориентации зерен, а также возникновение дефектных областей ведет к разупорядочению кристаллической структуры, что нашло отражение в результатах представленных на рисунке 2. Согласно полученным данным, изменение плотности дислокаций и концентрации дефектов, рассчитанных на основании изменения размеров зерен и их ориентации (дислокационная плотность, см. рисунок 2, а), а также степени упорядочения изменения дифракционных картин (концентрация дефектов, см. рисунок 2, б), имеет экспоненциальный характер с резким возрастанием при максимальной дозе облучения.



Рисунок 2. Графики изменения дислокационной плотности в структуре керамик (а) и концентрации дефектов в структуре (б)

Таким образом, анализ структурных изменений показал высокую степень устойчивости кристаллической структуры при малых дозах облучения, при этом увеличение дозы облучения до 1×10^{17} ион/см² приводит к существенному увеличению искажений кристаллической структуры и ее разупорядочению, за счет эффекта накопления дефектов в структуре, а также процессов наводораживания, когда концентрация внедренного водорода составляет (0,04–0,06% – согласно теоретическим расчетам концентрации внедренных ионов с использованием программного кода *SRIM Pro 2013*).

На рисунке 3 представлены результаты изменения коэффициента сухого трения и микротвердости по глубине в зависимости от дозы облучения.



Рисунок 3. Изменение коэффициента сухого трения в зависимости от дозы облучения

Увеличение количества циклов испытаний выше 10 000 приводит к незначительному увеличению ко-

эффициента сухого трения для исходного образца, которое обусловлено изменением поверхности керамики в процессе испытаний. При этом начальное значение величины коэффициента сухого трения остается практически неизменным для образцов облученных с дозами $1 \times 10^{15} - 10^{16}$ ион/см², однако в ходе испытаний величина коэффициента начинает возрастать после 7 500 циклов. При этом для образцов облученных дозой 1×10^{17} ион/см² происходит увеличение начального значения коэффициента, что свидетельствует об увеличении шероховатости поверхности. Дальнейшее увеличение в ходе циклических испытаний свидетельствует о деградации приповерхностного слоя и снижению твердости.

Заключение

В данной работе представлены результаты изучения процессов дефектообразования вызванными облучением протонами с энергией 1,5 МэВ и дозами 1×10^{15} , 1×10^{16} , 1×10^{17} ион/см² в керамиках на основе нитрида алюминия. Совокупность полученных данных свидетельствует о достаточно высокой степени устойчивости к протонному облучению и последующей эволюции дефектов в структуре нитридных керамик при дозах 1×10¹⁵-10¹⁶ ион/см² характерных для величины смещений 0,1-5 с.н.а, однако при больших дозах (10¹⁷ ион/см²) облучения происходит снижение прочности приповерхностного слоя, что приводит к резкому ухудшению прочностных свойств. Показана перспективность применения данного класса керамик в качестве конструкционных материалов ядерных реакторов, подвергающихся большим дозам облучения, в частности протонного излучения.

Работа выполнена в рамках Грантового финансирования МОН РК № АР08051975.

Литература

- 1. Du, Zhongpei, et al. The sound absorption properties of highly porous silicon nitride ceramic foams. // Journal of Alloys and Compounds. 2020. Vol. 820. P. 153067.
- 2. Xiao, Xiazi, and Long Yu. Nano-indentation of ion-irradiated nuclear structural materials: A review. // Nuclear Materials and Energy. 2019. P. 100721.
- Neumann, A., et al. Comparative investigation of the biocompatibility of various silicon nitride ceramic qualities in vitro. // Journal of Materials Science: Materials in Medicine. – 2004. – Vol. 15.10. – P. 1135-1140.
- Harris, Jonathan H. Sintered aluminum nitride ceramics for high-power electronic applications. // JOM. 1998. Vol. 50.6. P. 56-60.
- Bocanegra-Bernal, M. H., and B. Matovic. Mechanical properties of silicon nitride-based ceramics and its use in structural applications at high temperatures. // Materials Science and Engineering: A. – 2010. – Vol. 527.6. – P. 1314-1338.
- Mokgadi, T. F., et al. Slow and swift heavy ions irradiation of zirconium nitride (ZrN) and the migration behaviour of implanted Eu. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2019. – Vol. 461. – P. 63-69.
- Vasco, H. A., et al. Effect of swift heavy ion irradiation in the migration behavior of Xe implanted into TiN. // Vacuum. 2019. – Vol. 163. – P. 59-68.
- Wu, Zhengtao, Yiming Wu, and Qimin Wang. "A comparative investigation on structure evolution of ZrN and CrN coatings against ion irradiation." Heliyon 5.3 (2019): e01370.
- 9. Werdecker, Waltraud, and Fritz Aldinger. Aluminum nitride-an alternative ceramic substrate for high power applications in microcircuits. // IEEE transactions on components, hybrids, and manufacturing technology. 1984. Vol. 7.4. P. 399-404.
- Konusov, F. V., et al. Effect of short-pulsed ion irradiation on the optical and electrical properties of pyrolytic boron nitride. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2019. – Vol. 447. – P. 1-7.

- 11. Luo, Changwei, et al. Ionoluminescence and photoluminescence study of annealing and ion irradiation effects on zinc oxide. // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms. – 2020. – Vol. 471. – P. 7-12.
- 12. Bardyshev, I. I., et al. Positron Nondestructive Testing of Gamma-Neutron Irradiated Boron Nitride Ceramics.// Protection of Metals and Physical Chemistry of Surfaces. 2019. Vol. 55.5. P. 1015-1018.
- 13. Ikeue, Keita, Yuta Yamamoto, and Masashige Suzuki. Photocatalytic Activity for Hydrogen Evolution of Heteroatom-Doped SrTiO₃ Prepared Using a Graphitic-Carbon Nitride Nanosheet. // Ceramics. 2020. Vol. 3.1. P. 22-30.
- Zdorovets, M.V. et.al. Study of helium swelling in nitride ceramics at different irradiation temperatures. // Materials. 2019. Vol. 12.15. – P. 2415.
- 15. Ward, Joseph, et al. Influence of proton-irradiation temperature on the damage accumulation in Ti₃SiC₂ and Ti₃AlC₂. // Scripta Materialia. 2019. Vol.165. P. 98-102.

НИТРИДТІ КЕРАМИКАЛАРДЫҢ ПРОТОНДЫҚ СӘУЛЕЛЕНДІРУГЕ РАДИАЦИЯЛЫҚ ТӨЗІМДІЛІГІН ЗЕРТТЕУ

^{1,2)} А.Л. Козловский

¹⁾ Л.Н. Гумилев атындағы Еуразия ұлттық университеті, Нұр-Сұлтан, Қазақстан ²⁾ Ядролық физика институты, Алматы, Қазақстан

Алюминий нитриді негізіндегі керамикаларда энергиясы 1,5 МэВ және мөлшерлемесі 1×10^{15} , 1×10^{16} , 1×10^{17} ион/см² протонмен сәулеленуден туындайтын ақаулардың пайда болу процестерін зерттеу нәтижелері келтірілген. Керамиканың осы түрін таңдау ядролық энергетикадағы құрылымдық материалдардың негізі ретінде пайдалану мүмкіндігіне байланысты. Зерттеу барысында керамиканың $1 \times 10^{15} - 1 \times 10^{16}$ ион/см² сәулелену мөлшерлемесінде кристалл құрылымдық мәлериалдардың негізі анықталды, алайда сәулелендіру мөлшерлемесін 1×10^{17} ион/см²-қа дейін жоғарылату, құрылымда ақаулардың жиналу эффекті арқасында, кристалл құрылымының бұрмалануына және оның ретсізденуіне әкеледі.

STUDY OF RADIATION RESISTANCE TO PROTON PROCESSING OF NITRIDE CERAMICS

1,2) A.L. Kozlovskiy

¹⁾ Gumilyov Eurasian National University, Nur-Sultan, Kazakhstan ²⁾ Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan

The results of studying the processes of defect formation caused by irradiation with protons with an energy of 1.5 MeV and doses of 1×10^{15} , 1×10^{16} , 1×10^{17} ion/cm² in ceramics based on aluminum nitride are presented. The choice of this type of ceramics is due to the possibility of using nuclear energy as a basis for structural materials. In the course of the studies, it was found that at irradiation doses of 1×10^{15} – 1×10^{16} ion/cm² of ceramics showed a significant resistance of the crystal structure to defect formation, however, increasing the radiation dose to 1×10^{17} ion/cm² leads to a significant increase in distortions of the crystal structure and its disordering due to the effect of accumulation of defects in structure.

УДК 620.3

REVIEW: PHOTOLUMINESCENCE PROPERTIES OF UNDOPED AND Eu³⁺ DOPED ZnS NANOMATERIALS

L.R. Gahramanli

Baku State University, Baku, Azerbaijan

The PL properties of II-VI group semiconductor nanomaterials have been investigated depend of different synthesis method and other parameters. These group materials have interesting optical properties including PL properties of pure and doped materials. These group materials are mainly doped with rare earth metal for determine of improvement in the luminescence intensity. In this work we are analyzed PL properties of pure ZnS and Eu doped ZnS nanomaterials. *Keywords:* luminescence properties, doped, zinc sulfide, nanomaterials.

1 INTRODUCTION

II-VI group semiconductor materials have great attention due to unique properties and great application fields. That's why researchers have been investigated different properties of such group's materials in detail. These group materials mainly have two different crystal structure –zincblende and wurtzite structures. Some of II-VI compounds have n-type conductivity, others have ptype conductivity and another set can have both types of conductivity (n-type and p-type). ZnO,CdS, CdSe and ZnS are of the n-type binary II VI compounds. One interesting properties of binary material is ZnS. The production of n-ZnS is more difficult than the others [1].

ZnS is known to be a direct band gap semiconductor and has immense interest among researchers because of its potential applications, such as optical coating, photoconductors, optical sensors, phosphors, window material, dielectric filter, the field emission display and also in LEDs [2, 3]. There are different synthesis method for to obtain nanosized ZnS compounds: Sol-Gel method, mechanochemical reaction method, chemical precipitation method, simple hydrothermal method, solid state reaction method, wet chemical method and etc. [4].

It is known that rare earth elements are effective luminescent centers [5–9]. Rare earth-doped luminescent II-VI materials, for example, Eu, Ce and Sm doped CaS and SrS, are promising candidates for application in color thin-film electroluminescence devices [6, 7]. The purpose of these studies is create a new type of luminescence material-doped semiconductor nanocrystal. ZnS is a good host because of its large band gap (E=3.6 eV). The application field of ZnS nanomaterials can be expanded by doped with rare earth elements and in here, rare earth element can be act luminescent centers. These researches are necessary for the expanding opportunity of the application field of this materials. There are many researches europium doped ZnS nanomaterials in literature. In these research, the PL properties were investigated depend on different synthesis method and other parameters. In this review, a different approach to the PL properties of europium doped zinc sulphide nanomaterials is applied.

2~PL properties of pure ZNS and Eu^{3+} doped ZNS

2.1 Sputter deposition method

M. Aozasa and H. Chen were investigated ZnS:Eu electroluminescent devices with a single insulating layer were prepared by radio frequency magnetron sputtering[10]. In this experiment, they had been determined optimum concentration of europium dopant in the sputtering target. The dependence of the luminance of ZnS:Eu thin film electroluminescent devices on europium concentration in the sputtering target for the active layer. The maximum luminance L_{max} divided by the thickness d of the active layer is plotted to take the differences in the thickness into consideration. The thicknesses of the active layers of the samples subjected to the test are shown beside the plotted symbols. In the lower concentration region, the luminance increases with increasing europium concentration, reaching a maximum value at a europium concentration of about 0.94 mo1% and decreasing with further increase in europium concentration. A similar dependence was reported by Chase et al. [11]. The optimum europium concentration in the sputtering target is approximately 0.94mo1%. It is natural that the luminance decreases with decreasing europium concentration, because there could be no emission without luminescent centers. The decrease in the luminance at the higher concentration could result from the loss of electron energy necessary for the excitations due to the increased frequency of collisions between electrons and target molecules and concentration quenching [11]. The concentration quenching could be due to resonant energy transfer, resulting in the loss of excitation energy by the cross-relaxation between the activators or the migration of the excitation. The formation of non-radiative centers or killers by the cohesion of the activators could be another cause of the concentration quenching. Although the luminance is not good enough for practical use, it is several times higher than that reported by Katayama et al. [12]. The saturation in the luminance is not observed; therefore, if a more stable insulating layer or double insulating layers are used, a higher luminance can be obtained. The emission peaks observed correspond well to the Eu³⁺ emission ⁵D₀-

⁷D s (J=0-3) [11], although the ${}^{5}D_{0}$ - ${}^{5}D_{3}$ transition peak is a little bit too small. In order to obtain high luminance thin film electroluminescent devices, the dependence of the luminance characteristics on the substrate temperature for the deposition of the active layer was examined. The threshold voltage decreases when the active layer is prepared at elevated temperatures up to 450 °C. One of the reasons is the improvement in the crystallinity of the active layer, resulting in an increase in the electron mobility which easily causes an electron avalanche. The conduction current in the phosphor prepared at the higher temperature of 450 °C is larger than that in the phosphor prepared at the lower temperature and this result is consistent with the abovementioned assumption that the carrier mobility can be improved by preparation at elevated temperatures.

2.2 Solvothermal method

Pure and europium (Eu)-doped zinc sulfide (ZnS) nanoparticles were synthesized by the solvothermal method by K. Ashwini, C. Pandurangapp and B.M. Nagabhushan [13]. PL studies of the samples were carried out at room temperature using a spectrofluoremeter equipped with a 450 W xenon lamp as the excitation source. The PL spectra of Eu-doped ZnS nanocrystals were studied under 254 nm excitation. A strong emission was observed with its peak position centered at 390 nm. The PL intensity was found to increase with an increase in temperature from 300 to 500 °C. However, there is no significant change in the emission peak position. In Eu-doped ZnS the Eu ions are expected to be more stable in divalent (Eu²⁺) state than in the trivalent (Eu³⁺) state [14]. The researchers were observed in the present study is found to match well with the literature in the PL emission of Eu doped ZnS [15] and this indicates that Eu ions exist in the Eu²⁺ state. Also, the literature reveals that Eu-doped ZnO exhibits an emission at 400 nm due to Eu²⁺ ions and the emission peak is reported to be unaltered with an increase in temperature [16]. Therefore, the emission peak at 400 nm is found to be characteristic of Eu ions. Hence, there is no considerable shift in the emission peak position due to transition from the ZnS state to the ZnO state when heated to 500 °C. The emission centered at 390 nm in the present study may be attributed to Eu^{2+} ions [17]. It is observed that the peak intensities of the undoped samples are much smaller than those of the doped ones. This may be attributed to the effect of doping. When Eu ions are doped into ZnS nanoparticles, more defect states are introduced. This results in a reasonable increase in the peak intensities for the doped samples compared with the undoped ones. Also, in doped nanoparticles a large number of dopant centers are situated near the surface regions than in the interiors and hence are expected to give better emission efficiencies compared to pure ZnS. This is due to a high surface-to-volume ratio based on their small particle size. This is favorable for nucleation of the nanoparticles on the surface rather than interior of the samples. The high surface-to-volume ratio causes the surface states to act as luminescent quenching centers [18].

2.3 Solvothermal method

K. Ashwini, Yashaswini and C. Pandurangappa were prepared europium doped zinc sulfide nanocrystals (ZnS:Eu) by solvothermal method [19]. The PL studies of the samples are carried out at room temperature using spectrofluorimeter equipped with a 450 W Xenon lamp as the excitation source. The PL emission spectrum of Eu doped ZnS nanoparticles excited at 254 nm are shown. In 1 mol% Eu doped samples the PL emission spectrum is broad and symmetric with a prominent emission at 400 nm. However, with increase in concentration of Eu the PL emission spectrum becomes asymmetric and shows a series of side bands towards higher wavelength. The PL spectra show a prominent emission band peaked 400 nm besides three weak ones at 422, 485 and 530 nm. The emission at 422 nm is typical luminescence of ZnS resulting from the transition of electrons from shallow states near the conduction band to sulfur vacancies present near the valence band [20]. ZnS has a direct bandgap of 3.6 eV in which defect levels created by dopants form luminescence centers. On doping zinc sulfide with europium, the Eu^{2+} ions substitute the Zn^{2+} ions in the ZnS lattice and act as trap sites, where the electrons and holes can be trapped. An electron can undergo photo-excitation in the host ZnS lattice and subsequently decay to the defect level through a radiative transition. The strong emission at 400 nm could be attributed to the radiative decay between the localized states of Eu inside the ZnS band gap [21]. From the PL studies it is observed that the intensity of emission increases with increase in the dopant concentration. This may be attributed to the effect of doping. When Eu ions are doped into ZnS, more defect states are introduced. Also, in doped nanoparticles large number of dopant centers are situated near the surface regions than interiors and hence they give better emission efficiencies. This results in reasonable increase in the peak intensities with increase in the dopant concentration. Based on the literature the emission at 485 nm is attributed to the donor acceptor type defects centers [22]. The 530 nm green emission may be attributed to planar defects of the ZnS. They are due to the elemental sulfur species which are reported to be originated from the self-activated zinc vacancies of the ZnS nanostructures. It is proposed that for nanoparticles with reduced size, more zinc vacancies are located at the surface and they exhibit a dominant effect as green emission in the PL spectrum [23].

2.4 Sol–gel route in situ method

In this work, G. Earhart, B. Capoen and et all were reported ZnS semiconductor materials were prepared using the sol–gel route by an in situ method [24]. PL spectra of ZrO₂ thin films co-doped with ZnS and Eu³⁺ at different concentration ratios (ZnS:Eu = 10:2, 10:5 and 10:10). The results show clearly a decrease in the intensity of the ZnS nanoparticles PL band and an enhancement in the intensities of the Eu⁺³ bands with increasing Eu⁺³ concentration in the film. This observation means that the energy-transfer is more effective when the number of europium ions increases in the vicinity of the ZnS particles. This kind of measurement is used by several authors, as Kik and Polman [25], to emphasize the energy-transfer between the semiconductor nanoparticles and the rare-earth ions. Indeed, the enhancement factors measured for the 2, 5 and 10% Eu³⁺ co-doped samples in comparison with the 5% Eu³⁺ doped sample are 5, 10 and 13, respectively, which means that a competition occurs between the transfer and the quenching processes. In addition, the Eu³⁺ ions environment in the case of the co-doped system is slightly modified. This difference suggests a strong interaction between the matrix, the nanoparticles and the rare-earth ions, being able to modify the local symmetry of the ion. On its long-wavelength part, the emission spectrum of a 5% Eu3+-doped film, together with the emission of a 15% ZnS-5% Eu3+ co-doped film, measured at 293 K and 10 K. These typical emissions of Eu³⁺ were obtained after decomposition of the spectrum in order to extract the contributions of emissions bands due to the semiconductor nanoparticles and those of the europium ion. More evidence of the energy-transfer is obtained with PLE spectra at 613 nm (Eu³⁺: ${}^{5}D_{0} - {}^{7}F_{2}$). On the sample doped with Eu^{3+} ions only, one can observe the absorption bands corresponding to the intra-4f transitions ${}^{7}F_{0} - {}^{5}D_{4}$ (363 nm) and ${}^{7}F_{0} - {}^{5}L_{6}$ (395 nm) [26]. For other samples, co-doped with ZnS and Eu³⁺, the PLE spectra present broad bands beginning around 450 nm and level off below 355 nm. The difference between the PLE spectra with and without ZnS nanoparticles is the proof of the energy-transfer between semiconductor nanoparticles and rare-earth ions. Moreover, the fact that the PLE spectrum presents an efficient transfer for excitation wavelengths below 355 nm while the band gap of bulk ZnS corresponds to 336 nm (3.7 eV [27]), confirms that there exists a strong density of defect states. Thereby, in the case of this sample (15% ZnS-5% Eu³⁺), the energy transfer involves intermediate defect states due to S²⁻vacancies or Zn²⁺ interstitials. Indeed, measurements on this sample indicates that the real composition is 14.4% Zn-9.0% S-4.9% Eu, yielding the same ratio Zn: S equal to 1.6 as for the 20% ZnS-doped film.

2.5 Microwave-assisted solvothermal method

M. M. Ferrer, Cristiane W. R. and et. all were synthesis at different concentrations of europium- Eu^{3+} in zinc sulfide ZnS by microwave-assisted solvothermal method and investigated PL properties of all samples [28]. The PL emission spectra of pure and doped ZnS powders recorded at room temperature with excitation at 350.7 nm. The emission spectra show a broad band centered at ~484 nm which may be attributed to ZnS matrix, and the profile of emission band is typical of a multi-phonon and multilevel. A system in which relaxation occurs by several paths involving the participation of numerous states within the band gap of the semiconductor. The PL emission spectra of doped ZnS powders show that the maximum emission bands are centered at 498, 510, and 534 nm, for 1%, 2%, and 4% Eu³⁺, respectively. Therefore, a red shift emission was observed with the increase of europium concentration. The emission spectra show the characteristic narrow band assigned to ${}^{5}D_{0}$ - ${}^{7}F_{2}$ transitions in Eu³⁺ at 612 nm. The PL bands of three curves centered at 463.62 nm, 530.58, nm and 598.98 nm and their contributions in all doped samples. This suggests the incorporation of Eu³⁺ ion in the ZnS nanoparticles did not change its radiative relaxation processes. The red shift effect denotes a strong influence of the europium orange lines emission associated to the allowed transitions originated from electronic reconfiguration. To obtain a better understanding about the PL modifications in relation to the structural defects caused by the dopant, PL emission spectra were analyzed using decomposition. The contribution of each convoluted curve and its variations are depicted. Upon deconvolution, three pseudo-voids were chosen to describe the emissions; i.e., 463.62 nm (blue), 530.58 nm (yellow), and 598.98 nm (orange) labeled as a, b, and c, respectively. Pure ZnS has a greater contribution from the blue region; however, with the addition of europium and its increase, the contributions from the blue region decrease while the contribution from the orange region increases. The europium, besides its well defined bands, has modified the wide band of the matrix in the region between the orange and the red emissions, which indicates deep defects as a consequence of a different charge density in the lattice due to the Eu addition. To gain a better understanding of differences caused by the introduction of europium in PL results and the variations observed in the atomic orbitals, theoretical models of pure ZnS (p-ZnS) and doped ZnS (d-ZnS) were made. The doped models are not an exact replication of all modifications caused by the dopant in the lattice. The symmetry was maintained in both instances and the system d-ZnS has 3.125% of europium. Simulation results of band structure indicate a direct band gap at the Γ point in both models. The band gap values of p-ZnS and d-ZnS were 3.66 eVand 3.56 eV, respectively. Although there are limitations in simulating the experimental system, the theoretical and experimental results show the same behavior, i.e., the band gap decreases from pure to doped system. New localized states generated by the addition of Eu³⁺ in the forbidden band gap region increase the probability of fewer energy transitions which causes a red shift in the PL bands.

2.6 Coprecipitation reactions

ZnS:Eu nanocrystals were synthesized according to coprecipitation reactions [29]. In this work photoluminescent intensities of nanocrystal and ZnS:Eu synthesized using a new technique were 2.5 and 2.8 times higher than those of bulk phosphors. Similarly, the main PLE peak (monitored at 616 nm) of nanocrystal ZnS:Eu at 397 nm is due to $^{7}F_{4}$ - $^{5}D_{4}$ transitions of Eu³⁺.The excitation of nanocrystal ZnS:Eu is not related to charge-transfer state. The dominant PL peak of nanocrystal ZnS:Eu excited by 397 nm light is observed at 616 nm due to ${}^{5}D_{0} - {}^{7}F_{2}$ transitions of Eu³⁺. The PL intensity of nanocrystal ZnS:Eu was 2.8 times higher than that of bulk ZnS:Eu,while the PLE peaks of the bulk remain unchanged with those of nanocrystal.

2.7 Noncoordinating solvent system

In this work David H. and Stephane P. were investigated the sensitization of luminescent lanthanide Eu³⁺ cations by the electronic structure of zinc sulfide (ZnS) semiconductor nanoparticles and samples were prepared by using a noncoordinating solvent system [30]. Excitation spectra collected while monitoring the lanthanide emission bands reveal that the ZnS nanoparticles act as an antenna for the sensitization of Eu³⁺. In steady-state emission spectra for ZnS/Eu³⁺, for $\lambda_{ex} = 300$ nm, a λ_{em} band was assigned at 460 nm (ZnS band); for λ_{ex} = 375 nm, a λ_{em} band was found at 455 nm (ZnS band); and for $\lambda_{ex} = 440$ nm, a λ_{em} band was found at 510 nm (ZnS band). These materials also display a red edge effect. The absence of broad emission with band maximum centered at 520 nm upon exciting the sample at 300 nm indicates that the samples under investigation in the present work do not have significant emission from Eu²⁺. The excitation spectra of ZnS/Eu³⁺, for $\lambda_{em} = 410$ nm (ZnS emission), λ_{ex} bands were identified at 255, 270, and 350 nm; for $\lambda_{em} = 450$ nm (ZnS emission), λ_{ex} bands were assigned at 260 and 370 nm; and for $\lambda_{em} = 620$ nm (attributed to Eu^{3+} emission), a λ_{ex} band appeared at 360 nm, with a broad excitation band centered at 510 nm (assigned to a charge transfer transition from anion valence band to Eu³⁺ ions; vide infra). The luminescence signal from the Eu³⁺ is not clearly evident in the steady-state spectra. However, it becomes prominent in time-gated mode (vide infra).

2.8 Chemical stirring method

ZnS nanoparticles doped with europium ions in a polymer matrix were doped during precipitation [31]. The PL spectrum consists of an onset at 330 nm, a shoulder at 315 nm, and a steep absorption edge at 280 nm. The corresponding band gap energy of 3.9 eV is larger than the one observed in bulk ZnS (3.7 eV). This can be explained as a quantum size effect, due to the electron-hole confinement in a small volume [32]. The particle size of ZnS was found to be around 4.0 nm, according to a calibration curve presented by Rossetti et al. [33]. By excitation at 395 nm, a pink-red photoluminescence peak appeared. The peaks can be attributed to the ${}^{5}D_{0}$ - ${}^{7}F_{2}$ (617 nm) and the ${}^{5}D_{0}$ - ${}^{7}F_{1}$ (586 nm) electronic transitions of Eu^{3+} , which indicate that there are still some free Eu ions dispersed in the polymer matrix. Finally, nanoparticles' surface, resulting in Eu³⁺ activated ZnS. As expected, surface plays a significant role in the optical properties of such materials. The addition of Eu³⁺ to the outside of ZnS nanoparticles results in a totally different photophysical behavior, compared to the introduction directly inside the nanoparticles. The difference between

ion-activated nanocluster and doped nanocluster has been studied thoroughly for Mn by the Sooklal et al. [34]. The photoluminescent spectra of doped and undoped ZnS nanocrystals in a polymer matrix. Upon excitation at 315 nm, the solutions were photoluminescent in the blue, with the emission peak positioned around 420 nm. Depending on the concentration of the europium ions present, the photoluminescence spectrum was blueshifted as the concentration increased. The maximum luminescence was obtained when the dopant was about 2.5% molar percent. As we know, there are lots of surface defects working as energy traps in the nanoparticles, so that the photoluminescence of ZnS is frequently not observed at room temperature. In this work suggest that there are some Eu ions, dispersed on the surface of ZnS nanoparticles, working as modifiers to enhance the luminescence of ZnS nanoparticles. This could be interpreted as a passivation of sites of radiationless recombination.

2.9 Chemical stirring method

Eu²⁺ doped ZnS nanocrystals exhibit new luminescence properties were investigated by F.Q. Liu and Z.H. Hang [35]. The PLE spectrum recorded by scanning the excitation wavelengths while monitoring at 514 nm consists of two resolved absorption bands at 375 and 325 nm, respectively, which is red shifted from that of undoped ZnS. These two absorption bands should be due to the transition from energy levels in the midgap of ZnS host to excited states. The emission wavelength of 514 nm discussed here is not consistent to the red emission from 4 f⁶5d¹ - 4 f⁷ transition in alkaline earth sulfide matrix. Because the 5d excited states of Eu²⁺ ion are host sensitive, i.e the 4f⁶5d¹ states splitting due to spin-orbital coupling and crystal field may result in emission from blue to red [36]. To clarify the luminescence of Eu²⁺ ion in ZnS nanocrystals the measurements of dependence of PL, PLE and electron paramagnetic resonance on temperature are needed, which are now in progress.

2.10 Synthetic method

In this paper, synthesis of europium doped-zinc sulfide (Eu3+:ZnS) spherical nanoparticles was carried out using freshly prepared zinc oxide (ZnO) nanorods precursor and synthetic method used was the precipitation technique [37]. The luminescence emission in the range 440 nm - 492 nm recorded for Eu³⁺:ZnS nanoparticles can be ascribed to a self-activated centre formed between a Zn vacancy and a shallow donor associated with sulfur vacancy [38]. It is noted that the interstitially located Zn²⁺ were removed after conversion from ZnO to Eu³⁺:ZnS. This is evident from the quenching of the violet band located at 413 nm. The removed interstitial Zn²⁺ might have been substituted by S²⁻ which has a larger ionic radius, thus increasing the strain in the ZnS host lattice. Interestingly, the intensity of the blue emission at 440 nm remains almost unaltered even after the conversion of ZnO into Eu³⁺:ZnS, confirming our earlier argument that the blue emission was due to Zn vacancies. The blue-yellow emission band at 520 nm could be formed by the transfer of trapped electrons on the sulfur vacancies to interstitial sulfur states [39]. In addition to the defects related emission bands of ZnS host, transition bands such as ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{1}$ (590 nm – 592 nm), ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{2}$ (614 nm – 629 nm), ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{5}$ (758 nm) and ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{6}$ (882 nm) which are related to Eu³⁺ can also be observed under resonant excitation. No such transitions were observed for Eu³⁺:ZnS spherical nanoparticles under nonresonant excitation at 285 nm demonstrating that no energy transfer from the host ZnS to Eu³⁺ ions using this synthetic procedure, rather transition bands such ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{5}$ and ${}^{5}D_{0}{}^{-7}F_{6}$ which are seldom observed were recorded for this sample.

2.11 Atomic layer epitaxy method

Zinc sulphide thin films doped with europium have been grown by the atomic layer epitaxy method [40]. In this work were observed the red emission from the 5D, level of Eu^{3+} could be detected and the emission could be excited via the band gap of ZnS indicating that hydrogen sulphide does not reduce europium when reacting with Eu^{3+} , but that europium remains trivalent.

2.12 Modified precipitation method

In this work luminescent properties of Eu³⁺doped zinc sulfide nanocrystal were investigated [41]. Eu³⁺ doped zinc sulfide nanocrystals were prepared by a modified precipitation method. The Eu^{3 +} ion has 4f⁶ electron configuration and the spectra are observed on the excitation spectra of the ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{1}$ transition of these ions. Normally, Eu³⁺ generates luminescence due to the transition from the excited ${}^{5}D_{0}$ level to the ${}^{7}F$ levels of the $4f^{6}$ configuration. The transition in ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{1}$ (about 593 nm) results from magnetic coupling. Because of crystal-field transition, ${}^{7}F_{1}$ is split to produce blue emission. In order to interpret the excitation spectra of ZnS:Eu nanocrystal, one has to consider that Eu³⁺ ions can be excited to 4f higher energy state, and also to the transition state of electric charge because Eu³⁺ becomes the complex ions with sulfur ions in the crystal grating of ZnS. Transition state of electric charge is that an electron is transited to one ion from another ion, that is the electron in 3pelectron state of sulfur ion is transited to 4f-electron state of Eu³⁺ ion, so the Eu³⁺ is turned into Eu²⁺ and the S²⁻ is turned into S⁻. This is not a normal excitation process, because the luminescence is not a contrary process of excitation. When the electron is returned to surrounding ions from the state of the charge transition, the excitation energy are passed to Eu³⁺ions, and so Eu³⁺ions with the excitation energy may transit to ⁵D state, and produce luminescence. This excitation is called to the excitation

of the charge transition, and the excitation is line spectra, and the excitation between the 4f states of Eu^{3+} ions is band spectra. In ZnS host lattice, when Zn2+ ion is replaced to Eu^{3+,} the surrounding of Eu³⁺ has produced some defects because of the difference in the valence state. Because of different defects, the sites of Eu³⁺ in the crystal lattice are also different. The excitation and emission spectra of ZnS:Eu colloid with the surfactant are investigated. There are four emission spectra, such as 452.8, 592.0, 617.2 and 695.4 nm. The band at 452.8 nm results from water solution. The emission lines at 592.0, 617.2 and 695.4 nm result from the transition of ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{1}$, ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{2}$ and ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{3}$, respectively. The reasons of the transitions may be that the different symmetry of Eu³⁺ ions in some areas produced different emission sites because of the charge compensation. The Eu³⁺ ions are substituted for Zn^{2+} ion in the host lattice, so charge compensation exists. For keeping the system neutral, the residual charges of Eu³⁺ ions are compensated by some defects, such as the compensation of S²⁻ ions in a crack: the O²⁻ ions are replaced S²⁻ ions into the crystal grating to compensate. The surrounding of Eu³⁺ ions may be different because of different compensating forms, so different sites of emission are generated, and so on. The other results from the charge transition between Eu³⁺ and O²⁻ because the ZnS host materials has no absorption bands. From the results are observed the strength of the emission band is different with different amount of doping Eu³⁺ ions. The strength of the emission is directly proportional to the amount of doping Eu^{3+} ions.

CONCLUSION

In the Eu³⁺ doped ZnS, there are three emission sites of ZnS:Eu nanocrystals from the transitions of ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{1}$, ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{2}$ and ${}^{5}D_{0}-{}^{7}F_{3}$, respectively. The PL emission spectra showed an increase in PL intensity due to heating in undoped ZnS nanocrystals. At the same time the doping of Eu enhanced the emission efficiency of nanocrystalline ZnS. The PL studies of Eu doped ZnS nanoparticles reveal that for low concentration of Eu the PL emission spectrum is broad and symmetric with a prominent emission at 400 nm. However, with increase in Eu concentration the PL emission spectrum becomes asymmetric and shows a series of side bands towards higher wavelengths. The PL spectra show that Eu ions act as trap sites in the ZnS lattice. With increase in concentration of Eu the intensity of PL emission increases due to increase in defect sites and traps. So, nanocrystal-polymer composites ZnS:Eu exhibit enhanced luminescence and excellent thin film processibility, a further step is to try their capacity as electroluminescent devices.

References

- 1. Sh. J. Ikhmayies, Advances in the II-VI Compounds Suitable for Solar Cell Applications, 2014, ISBN: 978-81-308-0533-7.
- X. Fang, Y. Bando, M. Liao, T. Zhai, U. K. Gautam, L. Li, Y. Koide, D. G. Berg, Ultraviolet Sensors: An Efficient Way to Assemble ZnS Nanobelts as Ultraviolet-Light Sensors with Enhanced Photocurrent and Stability, Adv. Funct. Mater., 2010, doi.org/10.1002/adfm.201090004.
- 3. C. S. Pathak, Mrinal Kanti Mandal, V. Agarwala, Synthesis and characterization of zinc sulphide nanoparticles prepared by mechanochemical route, Superlattices and Microstructures 58:135–143, doi: 10.1016/j.spmi.2013.03.011.
- 4. P. Asha, M. Rajeswari and B. Bindhu, Zinc sulfide nanoparticles: processing, properties and applications: an overview, Journal of Chemical and Pharmaceutical Sciences, ISSN: 0974-2115.
- 5. L. H. Bing, Y. Q. Qing, Z. J. Lian, G. Junhua, W. H. Jie and W. Q. Ming, Chin. Phys. Lett. 15 (1998) 72.
- 6. K. Swiatek, M. Godlewski, L. Niinisto and M. Leskela, Acta Physica Polonica, A 82 (1992) 769.
- 7. K. Karpinska, K. Swiatek, M. Godlewski, L. Niinisto and M. Leskela, Acta Physica Polonica, A 84 (1993) 959.
- 8. R. Boyn, Phys. Status Solidi, B 148 (1988) 11.
- 9. K. Swiatek, M. Godlewski and D. Hommel, Phys. Rev. B 42 (1990) 3628.
- M. Aozasa, H. Chen, ZnS:Eu thin film electroluminescent devices prepared by r.f. magnetron sputtering, Thin Solid Films. 199(1991) 129-138.
- 11. E. W. Chase, R. T. Hepplewhite, D.C. Krupkaand, D. Kahng, J. Appl. Phys., 40(1969) 2521.
- 12. Y. Katayama, Y. Yamazaki, K. Yamamoto, It. Ohnishi, Applied Phy.s'iCm~ and lhe Related Societie,~, 1986. Paper 4p-S-10.
- K. Ashwini, C. Pandurangappa, B. M. Nagabhushan, Synthesis and optical properties of undoped and Eu-doped ZnS nanoparticles, Phys. Scr. 85 (2012) 065706, doi:10.1088/0031-8949/85/06/065706.
- 14. G. Blasse, B. C. Grabmaier, 1994 Luminescent Materials (Berlin: Springer).
- 15. Sh. L. Man, H. G. Qing, Zh. Z. Hau, F. L. Qi, Z. W. Guo, 2000 Chin. Phys. Lett. 17 609.
- 16. C. Panatarani, W. I. Lenggoro, K. Okuyama, 2004, J. Phys. Chem. Solids 65 1843.
- 17. J. S. Kim, J. Kim, T. W. Kim, S. M. Kim, H. L. Park, 2005 Appl. Phys. Lett. 86 091912.
- 18. W. Chen, J. Z. Zhang, A. G. Joly 2004 J. Nanosci. Nanotechnol. 4 919.
- 19. K. Ashwini, Yashaswini, C. Pandurangappa, Solvothermal synthesis, characterization and photoluminescence studies of ZnS:Eu nanocrystals, Optical Materials (2014), doi:10.1016/j.optmat.2014.07.019.
- H. C. Warad, S. C. Ghosh, B. Hemtanon, C. Thanachayanont, J. Dutta, Luminescent nanoparticles of Mn doped ZnS passivated with sodium hexametaphosphate, Sci. Technol. Adv. Mater. 6 (2005) 296.
- C. Panatarani, I. W. Lenggoro, K. Okuyama, The crystallinity and the photoluminescent properties of spray pyrolized ZnO phosphor containing Eu²⁺ and Eu³⁺ ions, J. Phys. Chem. Solids 65 (2004) 1843.
- 22. K. Manzoor, S. R. Vadera, N. Kumar, T. R. N. Kutty, Multicolor electroluminescent devices using doped ZnS nanocrystals, Appl. Phys. Lett. 84 (2004) 284.
- 23. H. Chen, Y. Hu, X. Zeng, Green photoluminescence mechanism in ZnS, nanostructures, J. Mater. Sci. 46 (2011) 2715.
- 24. G. Ehrhart, B. Capoen, O. Robbe, F. Beclin, Ph. Boy, S. Turrell, M. Bouazaoui, Energy transfer between semiconductor nanoparticles (ZnS or CdS) and Eu³⁺ ions in sol-gel derived ZrO₂ thin films Optical Materials 30 (2008) 1595-1602, doi:10.1016/j. optmat.2007.10.004.
- 25. P. G. Kik, A. Polman, Mater. Sci. Eng. B 81 (2001) 3.
- 26. K. Annpurna, M. Das, P. Kundu, R. N. Dwivedi, S. Buddhudu, J. Mol. Struct. 741 (2005) 53.
- 27. Z. Q. Ma, W. Li, D. M. Wang, Z. X. Zhao, Y. Wang, W. J. Yang, W. G. Zhao, Solid State Com. 137 (2006) 413.
- M. M. Ferrer, Y. V. B. Santana, C. W. Raubach, F. A. L. Porta, A. F. Gouveia, E. Longo, J. R. Sambrano, Europium doped zinc sulfide: a correlation between experimental and theoretical calculations, J Mol Model (2014) 20:2375, doi:10.1007/s00894-014-2375-5.
- 29. M. Ihara, T. Igarashi, T. Kusunoki, K. Ohno, Preparation and Characterization of Rare Earth Activators Doped Nanocrystal Phosphors, Journal of The Electrochemical Society, 147 (6) 2355-2357 (2000)
- P. Mukherjee, C. M. Shade, A. M. Yingling, D. N. Lamont, D. H. Waldeck, S. Petoud, Lanthanide Sensitization in II-VI Semiconductor Materials: A Case Study with Terbium(III) and Europium(III) in Zinc Sulfide Nanoparticles, J. Phys. Chem. A 2011, 115, 4031–4041, doi: 10.1021/jp109786w.
- D. D. Papakonstantinou, J. Huang, P. Lianos, Photoluminescence of ZnS nanoparticles doped with europium ions in a polymer matrix, Journal of materials science letters 17 (1998) 1571±1573.
- 32. R. Bhargava, D. Gallagher, T. Welker, J. Lumin. 60&61 (1994) 275.
- 33. R. I. Rossett, R. Hull, J. M. Gibson, L. E. Brus, J. Chem. Phys. 82 (1985) 552.
- 34. K. Sooklal, B. Cullum, S. Angel and C. Murphy, J. Phys. Chem. 100 (1996) 4551.
- 35. L. Sh. Man, G. H. Qing, H. Zh. Hua, L. F. Qi, W. Z. Guo, Photoluminescence of Eu²⁺ Doped ZnS Nanocrystals, Phys. Lett. Vol. 17, No. 8 (2000) 609.
- 36. S. Chunshan, S. Qiang, Earth Elements with Variable Valance, (Science Press, Beijing, 1994) p. 79 (in Chinese).
- I. Ahemen, A. Amah, B. E. AttahDaniel, A. Y. Fasasi, Spherical Nanoparticles of Eu³⁺ doped ZnS Semiconductor Synthesized from ZnO Nanorods Precursor, Nanoscience and Nanotechnology 2014, 4(1): 7-15. doi: 10.5923/j.nn.20140401.02.
- 38. J. Z. Liu, P. X. Yan, G. H. Yue, J. B. Chang, D. M. Qu, R. F. Zhuo, Red light photoluminescence emission from Mn and Cd co-doped ZnS one-dimensional nanostructures, Journal of Physics D. Applied Physics, 39,2006, 2352 – 2356.
- X. Wang, J. Shi, Z. Feng, M. Li, C. Li, Visible emission characteristics from different defects of ZnS nanocrystals, Phys. Chem. Chem. Phys, 2011, 13, 4715-4723.

- M. Tammenma, M. Leskela, T. Koskinen, L. Niinisto, Zinc sulphide thin films doped with rare earth ions, Journal of the Less-Common Metals, 126(1986) 209-214.
- H. Yang, L. Yu, L. Shen, L. Wang, Preparation and luminescent properties of Eu³⁺-doped Zinc sulfide nanocrystals, Materials Letters 58 (2004) 1172–1175, doi:10.1016/j.matlet.2003.09.009.

ШОЛУ: ЛЕГИРЛЕНБЕГЕН ЖӘНЕ Еu³⁺-ПЕН ЛЕГИРЛЕНГЕН ZnS наноматериалдарының фотолюминесценттік қасиеттері

L.R. Gahramanli

Баку мемлекеттік университеті, Әзірбайжан

Синтездің әртүрлі әдістеріне және басқа да параметрлерге байланысты II-IV топтағы жартылай өткізгіш наноматериалдардың фотолюминесценттік қасиеттері зерттелді. Бұл топтардың материалдары қызықты оптикалық қасиеттерге ие, соның ішінде таза және легирленген материалдардың фотолюминесценциясына ие. Аталған топтардың материалдары люминесценцияның қарқындылығын жақсарту үшін негізінен сирек кездесетін металлмен легирленеді. Осы жұмыстың барысында Еu қоспаланған таза ZnS және ZnS наноматериалдарының фотолюминесценттік қасиеттеріне талдау жасалады.

Кілт сөздер: люминесценттік қасиеттер, легирлеу, мырыш сульфиді, наноматериалдар.

ОБЗОР: ФОТОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫЕ СВОЙСТВА НЕЛЕГИРОВАННЫХ И ЛЕГИРОВАННЫХ Еu³⁺ НАНОМАТЕРИАЛОВ ZnS

L.R. Gahramanli

Бакинский государственный университет, Баку, Азербайджан

Исследованы фотолюминесцентные свойства полупроводниковых наноматериалов II-IV групп в зависимости от различных методов синтеза и прочих параметров. Материалы этих групп обладают интересными оптическими свойствами, в том числе фотолюминесценцией чистых и легированных материалов. Материалы этих групп в основном легируются редкоземельным металлом для улучшения интенсивности люминесценции. В ходе развития данной работы, анализируются фотолюминесцентные свойства наноматериалов из чистого ZnS и ZnS, легированного Eu.

Ключевые слова: люминесцентные свойства, легирование, сульфид цинка, наноматериалы.

УДК539.23

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКТУРНО-ФАЗОВОГО СОСТОЯНИЯ АЗОТСОДЕРЖАЩИХ ПОКРЫТИЙ ДИОКСИДА ТИТАНА, СИНТЕЗИРОВАННЫХ МЕТОДОМ РЕАКТИВНОГО МАГНЕТРОННОГО РАСПЫЛЕНИЯ

¹⁾ Аубакирова Д.М., ²⁾ Пичугин В.Ф., ¹⁾ Ердыбаева Н.К., ³⁾ Сагдолдина Ж.Б.

 Восточно-Казахстанский государственный технический университет им. Д. Серикбаева, Усть-Каменогорск, Казахстан
²⁾ Томский политехнический университет, Томск, Россия
³⁾ Восточно-Казахстанский государственный университет им. С. Аманжолова, Усть-Каменогорск, Казахстан

sagdoldina@mail.ru

В работе представлены результаты исследования влияния соотношения реактивных газов N₂ и O₂ на структурнофазовое состояние и механические свойства азотсодержащих покрытий диоксида титана, полученных методом реактивного магнетронного распыления на поверхности нержавеющей стали12X18H10T. По результатам рентгенофазового анализа покрытия содержат диоксид титана в форме анатаза, рутил и небольшое содержание брукита. Установлено, что с ростом содержания азота в рабочей атмосфере объемная доля анатаза и рутила растет. Увеличение содержание азота в газовой атмосфере приводит к образованию квазиоднородной текстуры поверхности с менее выраженной блочной структурой. На основе результатов наноиндентирования можно предположить, что образование квазиоднородной текстуры может послужить причиной снижения физикомеханических параметров покрытий. Установлено, что структура, фазовый состав и механические свойства покрытий зависят от величины соотношения газов N₂/O₂ в режиме отрицательного смещения (U_{см}= -150 B).

Введение

В последнее время покрытие на основе диоксида титана привлекает все большее внимание благодаря их повышенной коррозионной стойкости и потенциальному применению в различных отраслях промышленности. Анатаз TiO₂, обладающий свойствами полупроводника, демонстрирует высокий коэффициент пропускания видимого света из-за большой ширины запрещенной зоны 3,2 эВ, может быть использован для фотокатализа[1, 2]. Новое прозрачное теплоизоляционное покрытие на основе оксида титана и оксида олова с примесью сурьмы показывает большой потенциал для производства энергосберегающих окон [3]. Еще одно применение оксида титана заключается в использовании его в качестве декоративного покрытия в архитектуре, автомобильной промышленности и ювелирных изделиях [4, 5]. Наноструктурные материалы на основе оксида титана демонстрируют положительный эффект на поверхности материалов биомедицинского назначения. Например, применение нержавеющей стали 12X18H10Тв широком спектре биоинженерных приложений ограничено определенным диапазоном, поскольку при воздействии агрессивных жидкостей в присутствии галогенид-ионов они имеют тенденцию к локальной коррозии [6]. Одним из способов решения этой проблемы является модификация поверхности или нанесение тонких пленок TiO₂, который обладает низким коэффициентом трения, высокой износостойкостью, хорошей устойчивостью к коррозии и высокой биосовместимостью [7–9]. ПокрытиеТiO₂, легированное неметаллами, привлекло большое внимание из-за его нетоксичности. В последнее время

было проведено много исследований для получения покрытий из TiO₂, легированных азотом N, путем окисления TiNx. таких как анодное окисление пленок нитрида титана, полученных электрофоретическим осаждением [10], золь-гель [11] методом, химическим осаждением из паровой фазы (CVD) [12], окисление пленок TiNx, нанесенных реактивным магнетронным распылением [13]. В технологии поверхностного легирования плазмой, азотосодержащие покрытия TiO₂ (N-TiO₂) могут быть получены на подложке распылением мишени из Ті в смеси газов Ar, O₂ и N₂, но возникают два технологически важных вопроса. Одним из них является то, что кислород приводит к «отравлению мишени (катода)», что влияет на стабильность параметров процесса и скорость осаждения[14]. Другое заключается в том, что при распылении тлеющим разрядом температура подложки может достигать 950 °С. Это может привести к образованию покрытий TiO₂ со структурой рутила, а не анатаза, обладающего хорошими фотокаталитическими свойствами.

Среди известных процессов нанесения покрытий магнетронное распыление успешно используется для получения биомедицинских, функциональных и защитных покрытий [15]. Процесс магнетронного распыления обладает следующими основными преимуществами: покрытия характеризуются высокой адгезией, так как распыленные атомы имеют достаточно высокую скорость и степень ионизации; промышленный процесс применим для крупномасштабного производства; возможность получения покрытий из различных химических соединений. Морфологию и структуру покрытий TiO₂ можно контролировать па-

раметрами магнетронного распыления: химически активными газами [16], мощностью [17], температурой осаждения [18] и отрицательным электрическим смещением на подложке [19]. В настоящей работе представлены результаты исследования структуры и механических свойств азотсодержащих покрытий диоксида титана на поверхности нержавеющей стали12X18H10T, синтезированных методом реактивного магнетронного распыления при разных соотношениях реактивных газов N₂ и O₂.

Материалы и методы исследования

Для напыления покрытий использовалась установка среднечастотного магнетронного напыления ТИОН-2М с дуальной магнетронной системой, состоящей из двух катодных узлов с цилиндрическими мишенями из Ті марки BT1-0 (Томский политехнический университет, г. Томск, РФ). Перед нанесением покрытий (N-TiO₂) на поверхность стали 12X18H10T наносился подслой Ті в атмосфере аргона. Режимы осаждения покрытий: распыляемый материал катод – Ті, давление для всех режимов напыления составляло 0,2 Па, мощность 3 кВт, ток 3 А. В качестве рабочего газа использовался аргон с постоянной скоростью натекания 4.2 мл/мин для всех режимов напыления. Реактивным газом служила смесь азота и кислорода. Соотношение парциального давления реактивных газов азота и кислорода (p(N₂)/p(O₂)) в составе рабочего газа поддерживалось на уровне: N2/O2=1; $N_2/O_2=1,5$; $N_2/O_2=2$. Режимы осаждения покрытий представлены в таблице. Отрицательный потенциал смещения, приложенный к подложке, составлял -150 В. В процессе осаждения подложка нагревается за счет воздействия плазмы до (130±5) °С.

Морфология поверхности покрытий N-TiO₂ была исследована методом атомно-силовой микроскопии (ACM) на установке Solver Spectrum (КазНУ им. аль-Фараби, г. Алматы). Рентгеноструктурные исследования покрытий проводились на дифрактометре *XRD-7000 (Shimadzu)* в геометрии скользящего пучка (угол скольжения равен 3°). Идентификация фаз проводилась с помощью базы данных *PDF-4 ICDD* в программе *PowderCell 2.4*. Измерение нанотвердости и модуля Юнга покрытий проводили на нанотвердомере *НаноСкан-4D Компакт*. Характеристики осажденных пленок и параметры нанесения покрытий приведены в таблице.

Таблииа.	Режимы	нанесения	и характе	гристики	покрытий
1 aostatigas	1 conclamor	nancecentar	<i>a suparance</i>	puemunu	nonpointait

Соотношение N ₂ /O ₂	Ско натекан мл	рость іия газов, /мин	ов, Толщина Показатель пленки, преломлени нм при 632.8 нм	
	N ₂	O ₂	пм	при 052,6 нм
1	3	3	164±14	2
1,5	3,06	2,06	142±6	2,43
2	6	3	135±10	2

Экспериментальные результаты

На рисунке 1 показаны результаты ACM исследования поверхности покрытий, полученных при разном массовом соотношении N_2/O_2 . При малом массовом соотношении N_2/O_2 образуется равномерное плотное покрытие (рисунок 1, а и 1, б). Увеличение содержание азота в газовой атмосфере приводит к образованию квазиоднородной текстуры поверхности с менее выраженной блочной структурой (рисунок 1, в).



Рисунок 1. АСМ изображения оксинитридных покрытий титана на поверхности стали 12X18H10T при массовом соотношении N₂/O₂: a) 1; б) 2,5; в) 2

На детальном изображении микроблоков наблюдаются следствия реструктурирующих процессов роста. Зарождение мелких зёрен наблюдается на уровне подложки, которые в процессе роста сливаются с соседними. Поверхность представляет собой квазиоднородную слабозёренную текстуру. В работе [20] приводиться, что высокая концентрация примесного азота блокирует рост кристаллических граней, а, следовательно, рост плёнки происходит за счёт повторного зародышеобразования. Поверхность плёнок образована случайно ориентированными ультрамелкими зёрнами вытянутой формы без формирования агломератов, что объясняет унимодальное распределение размеров зёрен на поверхности. Также можно отметить, что с увеличением содержание азота в газовой атмосфере (N₂/O₂=2) уменьшается толщина покрытий, как указано в таблице 1. Предполагается, что избыток азота во время осаждения может оказывать сильное влияние на взаимодействующие ионы, тем самым снижает скорость осаждения.

Результаты рентгенофазового анализа показывают, что введение азота оказывает влияние на фазовый состав полученных покрытий (рисунок 2). Полученные покрытия являются кристаллическими и состоят из фазы анатаза (А), рутила (R), и брукита (В). Также зафиксированы дифракционные пики железа

из подложки. Увеличение содержания азота в пленках приводит к изменению интенсивности дифракционных рефлексов, что обусловлено изменением фазового состава покрытий. Интенсивность дифракционных пиков преобладающих фаз рутила и анатаза увеличиваются с ростом содержания азота в газовой атмосфере. Образование нитридных соединений в покрытиях не выявлено. Незначительное смещение максимума линии анатаза (101) на 0,1°–0,3° в сторону меньших углов наблюдается с увеличением содержания азота в атмосфере (рисунок 2в). В наших экспериментах, основываясь на результаты, можно сделать вывод, что при потенциале смещении -150 В увеличение массового соотношения N₂/O₂приводит к увеличению доли анатаза и рутила.



Рисунок 2. Дифрактограммы оксинитридных покрытий титана, полученных при массовом соотношении N₂/O₂: а) 1; б) 2,5; в) 2

Исследования механических характеристик полученных покрытий проводились методом динамического наноиндентирования. Вычисление модуля упругости и твердости пленок осуществлялось методом Оливера-Фарра. Типичные диаграммы динамической нагрузки-разгрузки представлены на рисунке 3, а. Из анализа кривых нагрузки и разгрузки видно, что деформация носит упругопластический характер, после снятия нагрузки происходит частичное восстановление отпечатка. Данные рисунка 3, б показывают увеличение твердости поверхности после нанесения покрытий по сравнению с нержавеющей сталью12Х18Н10Т (3,2 ГПа), согласно результатам [19]. Снижение значений механических характеристик покрытий с увеличением содержания азота может быть связано с образованием квазиоднородной микроструктуры поверхности образца.



Рисунок 3. Кривые нагрузки-разгрузки (а) и зависимость твёрдости и модуля Юнга от массового соотношения N2/O2 (б)

Заключение

Кристаллические оксинитридные покрытия титана были успешно нанесены реактивным магнетронным распылением на нержавеющую сталь при разном массовом соотношении N_2/O_2 . Приложение отрицательного смещения к подложке (-150 B) является эффективным способом осаждения защитных тонких пленок на основеТіО₂ на поверхностях, что обусловлено повышением плотности ионизации и энергии частиц, налетающих на поверхность, и способствует повышению гладкости поверхности. Увеличение содержание азота в газовой атмосфере приводит к образованию квазиоднородной текстуры поверхности с менее выраженной блочной структурой. Результаты рентгеновской дифракции показывают, что анатаз и рутил являются основными фазами, присутствующими в покрытиях, наряду с небольшим количеством брукита в условиях увеличения содержание азота. Нанотвердость осажденных покрытий показывает большие значения, чем твердость нержавеющей стали. Однако по результатам наноиндентировании можно предположить, что образование квазиоднородной текстуры с ростом содержания азота в составе рабочего газа может послужить причиной снижения физико-механических параметров покрытий.

Литература

- Wuyou Fua, Haibin Yangab, Lianxia Changa. Hari-Balab Minghua, Lic Guangtian Zoua. Anatase TiO₂ nanolayer coating on strontium ferrite nanoparticles for magnetic photocatalyst //Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects. - 2006. – V. 289. – P. 47–52.
- Manuel Lunaa José, M. Gaticab Hilario, Vidalb Maria, J. Mosqueraa. Use of Au/N-TiO₂/SiO₂ photocatalysts in building materials with NO depolluting activity //Journal of Cleaner Production, – 2020. – V. –P. 243118633.
- Hong Zhonga Yuanhao, Wangb Hongxing. A novel transparent thermal insulation bilayer coating based on ATO/Black TiO₂ //Energy Procedia. –2019. –V. 158. – P. 1072–1079.
- Diamanti M.V., Del Curto B., Pedeferri M.P. Interference colors of thin oxide layers on titanium, Colour Res. 2008. –V. 33. P. 221–228.
- Zdunek K., L. Skowronski, R. Chodun, K. Nowakowska-Langier, GrabowskiA., WachowiakW., OkrasaS., WachowiakA.A., StraussO., WronkowskiA., DomanowskiP. Nowel GIMS technique for deposition of colored Ti/TiO₂ coatings in industrial scale // Materials science-Poland. – 2016. –V. 34. – P. 137–141.
- Zalnezhad E.A., Hamouda M.S., Faraji G. and Shamshirband S. TiO₂ nanotube coating on stainless steel 304 for biomedical applications. Ceramics International. – 2015. – V. 41. – P. 2785–2793.
- Wu S. Functionalized TiO₂ based nanomaterials for biomedical applications //Advanced Functional Materials. 2014. V. 24(35). – P. 5464–5481.
- Krishna D., Sun Y, Chen Z. Magnetron sputtered TiO₂ films on a stainless steel substrate: selective rutile phase formation and its tribological and anti-corrosion performance //Thin Solid Films. – 2011. – V. 519. – P. 48604864.
- Shan C, Hou X, Choy K. Corrosion resistance of TiO₂ films grown on stainless steel by atomic layer deposition //Surface and Coatings Technology. – 2008. –V. 202. – P. 23992402.
- Zhi-Yong Y., Zhang W, Ming M., Xiaoli C. Visible light photoelectrochemical response of nitrogen-doped TiO₂ thin films prepared by anodic oxidation of titanium nitride films //Acta Physico-Chimica Sinica. – 2009. – V. 25. – P. 3540.
- 11. Vicente G.S., Morales A., Gutierrez M.T. Preparation and characterization of sol-gel TiO₂ antireflective coatings for silicon //Thin Solid Films. 2001. V. 403. P. 335–338.
- 12. Chang C.Y., Hsieh Y.H., Chen Y.Y. Degradation of Semiconductor manufacturing Wastewater by Using a Novel magnetic Composite TiO₂/Fe₃O₄ Photoreactor Design //Journal of Nanomaterials. 2012. –V. 20. P. 1–6.
- 13. Пичугин В.Ф. Растворение invitro, структурные и электрокинетические характеристики оксинитридных покрытий титана, полученных методом реактивного магнетронного распыления // Поверхность. Рентгеновские, синхротронные и нейтронные исследования. 2016. № 3. С. 19–29.
- 14. Wang H., Tang B., Xiu-yan L. Microstructure and Wear Resistance of N-Doped TiO, Coatings Grown on Stainless Steel by Plasma Surface Alloying Technology //Journal of Iron and Steel Research, International. 2011. V. 18. –P. 73–78.
- López-Huerta F., Cervantes B., González O., Hernández-Torres J., García-González L., Vega R., Herrera-May A.L., Soto E. Biocompatibility and Surface Properties of TiO₂ Thin Films Deposited by DC Magnetron Sputtering //Materials. – 2014. – V. 7. – P. 4105–4117.
- Saoula N., Djerourou S., Yahiaoui K., Henda K., Kesri R., Erasmus R.M., Comins J.D., Study of the deposition of Ti/TiN multilayers by magnetron sputtering//Surface Interface Analysis. – 2010. – V. 42. – P. 1176–1179.
- 17. Martin N., Baretti D., Rousselot C., Rauch J.Y. The effect of bias power on some properties of titanium and titanium oxide films prepared by r.f. magnetron sputtering //Surface Coating Technology. 1998. V. 107. P. 172–182.
- Chuang L.C., Luo C.H. Progress in La-doped SrTiO₃ (LST)-based anode materials for solid oxide fuel cells//Advanced Materials Research. – 2011. – V. 214. –P. 388–391.
- Baita L., Azzouzb L., Madaouia N., Saoulaa N. Influence of substrate bias voltage on the properties of TiO₂ deposited by radiofrequency magnetron sputtering on 304L for biomaterials applications //Applied Surface Science. – 2017. – V. 395. – P. 72–77.
- Pustovalova A., Ivanova N. Structural changes of titanium dioxide thin films deposited by reactive magnetron sputtering through nitrogen incorporation //Key Engineering Materials. – 2016. – T. 683. – C. 383–388.

РЕАКТИВТІ МАГНЕТРОНДЫ ШАШЫРАУ ӘДІСІМЕН ЖАСАЛҒАН АЗОТ ҚОСЫЛҒАН ТИТАН ДИОКСИДІ ТИТАНЫ ҚАПТАМАСЫНЫҢ ҚҰРЫЛЫМДЫҚ-ФАЗАЛЫҚ КҮЙІН ЗЕРТТЕУ

¹⁾ Д.М. Аубакирова, ²⁾ В.Ф. Пичугин, ¹⁾ Н.К. Ердыбаева, ³⁾ Ж.Б. Сағдолдина

Д. Серікбаев атындағы Шығыс-Қазақстан мемлекеттік техникалық университеті, Өскемен, Қазақстан
²⁾ Томск политехникалық университеті, Томск, Ресей
³⁾ С. Аманжолов атындағы Шығыс-Қазақстан мемлекеттік университеті, Өскемен, Қазақстан

⁷ С. Аминжолов итыноигы шығыс-ңазақстан мемлекеттік университеті, өскемен, ңазақстан

Жұмыста 12Х18Н10Т тот баспайтын болатқа жағылған реактивті-магнетронды шашырау әдісімнен алынған титан диоксиді қаптамасына N₂және O₂реактивті газдарының әсерін зерттеу нәтижелері берілген. Қаптамаларға жүргізілген рентгендік-фазалық талдаулары анатаз, рутил және аз мөлшердегі брукит үлгісіндегі дитан диоксидінің бар екенін көрсетеді. Жұмыстық атмосферадағы азоттың көбеюі, анатаз бен рутилдің көбеюіне әкелетіні көрсетілді. Газдық атмосферадағы азот мөлшерінің артуы, блоктық құрылымы бар бірқалыпты беткі қабаттың түзілуне әкеледі. Наноиндентирлеу нәтижелеріне қарап, бір қалыпты беттің түзілуі, қаптаманың физико-механикалық параметрлерінің төмендеуіне байланысты деп болжам жасауға болады. Қаптаманың құрылысы, фазалық құрамы және механикалық құрылымы және теріс ығысу режиміндегі N₂/O₂газдарының қатынасына байланысты екені көрсетілді(U_{ығысу} = -150 В).

STUDY OF THE STRUCTURAL-PHASE STATE OF NITROGEN – CONTAINING COATINGS OF TITANIUM DIOXIDE SYNTHESIZED BY THE REACTIVE MAGNETRON SPUTTERING

¹⁾ D.M. Aubakirova, ²⁾ V.F. Pichugin, ¹⁾ N.K. Yerdybaeva, ³⁾ Zh.B. Sagdoldina

D. Serikbayev East Kazakhstan state technical university, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan
²⁾ Tomsk polytechnic university, Tomsk, Russia
³⁾ S. Amanzholov East Kazakhstan state university, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

The paper presents the results of the study of the effect of ratios of reactive gases N_2 and O_2 on the structural phase state and the mechanical properties of nitrogen-containing titanium dioxide coatings obtained by reactive magnetron sputtering on the surface of AISI 304 stainless steel. According to the results of the X-ray phase analysis, the coatings contain titanium dioxide in the form of anatase, rutile and a small amount of brookite. It was found that with an increase in the nitrogen content in the working atmosphere, the volume fraction of anatase and rutile increases. An increase in the nitrogen content in the gas atmosphere leads to the formation of a quasihomogeneous surface texture with a less pronounced block structure. Based on the results of nanoindentation, it can be assumed that the formation of a quasihomogeneous texture can cause a decrease in the physicomechanical parameters of the coatings. It was established that the structure, phase composition, and mechanical properties of the coatings depend on the gas ratio N_2/O_2 in the negative bias mode (U_{bias} = -150 V). УДК 537.533.9

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОЙ ОБРАБОТКИ ПОЛИМЕРА СВМПЭ НА СТРУКТУРУ И МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА

¹⁾ Рахадилов Б.К.,¹⁾ Сагдолдина Ж.Б., ²⁾ Баятанова Л.Б., ²⁾ Рахымжанова К.Б., ¹⁾ Сәндібек А.Қ.

 Восточно-Казахстанский государственный университет им. С. Аманжолова, Усть-Каменогорск, Казахстан
Восточно-Казахстанский государственный технический университет им. Д. Серикбаева, Усть-Каменогорск, Казахстан

sagdoldina@mail.ru

В настоящей работе, представлены результаты исследования влияния электронно-лучевой обработки (ЭЛО) на структуру и механические свойства сверхвысокомолекулярного полиэтилена (СВМПЭ). ЭЛО образцов СВМПЭ осуществлялось на промышленном импульсном ускорителе ИЛУ-10. Энергия электронов варьировалась в пределах 2,5–4,5 МэВ, а доза облучения варьировалась в пределах 2–9 МГр. Методом дифференциальносканирующей калориметрии определены термические характеристики полимерных образцов. Проанализировано влияние облучения на процесс кристаллизации полимера. Было обнаружено, что эффект образования сшивок не является существенным в отношении кристаллической структуры (толщины ламелей) и доза облучения почти не влияет на температуру плавления СВМПЭ. Полученные инфракрасные спектры показали, что во время ЭЛО в образцах СВМПЭ происходит окисление в результате химических реакций полиэтиленовой цепи с кислородом. Установлено, что ЭЛО приводит к изменению морфологии поверхности, то есть поверхность становится шероховатой, увеличивается глубина неровности и структура сферолитов. Результаты механических испытаний показали, что после ЭЛО прочность и твердость СВМПЭ незначительно увеличиваются.

Введение

В последнее время достаточно интенсивно ведутся исследования по влиянию ЭЛО на структуру и свойства полимеров. Вместе с тем, недостаточно изучен механизм структурно-фазовых превращений в полимерных материалах при вневакуумной ЭЛО в промышленных импульсных ускорителях. Все эффекты облучения, воздействующие на полимерные материалы, сложно предсказать. Несмотря на простую полимерную структуру, все протекающие в структуре изменения являются достаточно сложными. Поскольку для разрушения химических связей требуется приложение энергии в несколько эВ, можно ожидать, что излучение падающего электронного пучка, составляющее, как правило, несколько МэВ, неминуемо приведет к разрушению связей полимерной цепи. Обычно в полимерах происходит либо разрушение, либо образование новых поперечных межмолекулярных связей (сшивка). Однако в большинстве случаев, имеет место и первое, и второе. Известно, что образование поперечных межмолекулярных связей в полиэтилене улучшает его сопротивление истиранию, что широко используется в ряде промышленных приложений [1]. Ученые обнаружили, что степень кристалличности увеличивается с увеличением поглощенной дозы облучения до 200 кГр и далее не изменяется [2]. Результаты эксперимента, полученные в работе [3] показали, что с увеличением дозы повышается степень кристалличности, а сопротивление усталости увеличивается по сравнению с необлученными образцами, что аналогично характеристикам износостойкости. В результатах работы [4] предполагается, что в СВМПЭ, облученном электронным пучком при температуре 100 °C, возникает большое количество поперечных межмолекулярных связей по сравнению с необработанным материалом, что повышает прочность полимера на разрыв и его износостойкость. Кроме того, в зависимости от внешних условий облучения в полимере возникают структурные изменения (двойные связи, поперечные межмолекулярные связи, а также образование окислов). Показано, что механические характеристики тесно связаны с модификацией структуры. Предел прочности на разрыв облученных образцов увеличился, в то время как удлинение до разрыва при растяжении по сравнению с необработанными образцами полимеров уменьшается. Экспериментально показано, что с увеличением дозы облучения, как на воздухе, так и в вакууме, скорость износа уменьшается.

Механические характеристики тесно связаны с модификацией структуры, сформированной после электронного облучения. Повышение износостойкости полимерных материалов связано с созданием большого количества поперечных связей при облучении электронным пучком. Результаты, полученные в работе [5], подтвердили, что поперечная сшивка при значительных дозах преобладает над деполимеризацией, даже если облучение выполнялось в воздухе. Таким образом, поиск дальнейших путей повышения износостойкости СВМПЭ и композитов на его основе является актуальной научно-технической проблемой.

СВМПЭ – это разновидность полиэтилена, в котором длина молекулярной цепи (-C2H2-) превышает один миллион углеродных единиц. Благодаря его уникальным свойствам – высокому сопротивлению изнашиванию и высокой ударной вязкости, СВМПЭ все чаще используется в промышленности в узлах трения деталей машин и механизмов, а также медицине. Изделия из СВМПЭ, помимо низкого коэффициента трения, химической стойкости и сохранения свойств при низких температурах должны обладать и высокой износостойкостью, что может быть достигнуто за счет его наполнения либо поверхностной модификации [5].

В связи с вышеизложенным, целью данной работы являлось изучение закономерности структурных превращений и формирования износостойких модифицированных поверхностных слоев СВМПЭ при вневакуумной ЭЛО.

Объекты и методы исследования

Для изучения структурно-фазовых состояний после ЭЛО применялись следующие методы исследования: растровая электронная микроскопия (JSM-6490, JEOL), рентгенофазный анализ (X'Pert PRO, PANAlytical), инфракрасная колебательная спектроскопия (ИК-Фурье FTIR-801 Simex), метод дифференциально-сканирующей калориметрии (ДСК), измерение твердости методом ТК-2М (в соответствии с ГОСТ 4670-91), механические испытания на растяжение (универсальная установка для испытаний WDW-5E). В качестве материала для исследования был выбран универсальный многофункциональный полимер конструкционного и криотехнического назначения СВМПЭ. Заготовки образцов для исследований в виде круга толщиной 3 мм вырезали из прутка полимера (диаметр прутка 30 мм). В таблице 1 представлены характеристики полимера.

Таблица 1	. Технические	характерист	ики сверхвысоко-
м	олекулярного	полиэтилена (СВМПЭ)

Параметр	Значение
Плотность	0,93 г/см ³
Температура плавления	135 °C
Температура деформации	79 °C
Предел текучести / прочность при растяжении	20 МПа
Растяжение на разрыв	> 200 %
Модуль упругости при растяжении	680 МПа
Твёрдость по Шору	63

ЭЛО образцов из полимерного материала осуществлялось на промышленном импульсном ускорителе ИЛУ-10. Ускорители типа ИЛУ являются достаточно специфическими линейными высокочастотными ускорителями – это однорезонаторные машины, работающие в режиме стоячей полуволны (в отличие от большинства линейных ускорителей). В состав ускорителя входят: ускоряющая система с выпускным устройством, вакуумной системой и ВЧ генератором; импульсный источник питания; стойка управления. Рабочие частоты ускорителя ИЛУ-10 – 118 МГц, длина ускоряющего промежутка ускорителя ИЛУ-10 26 см. Основные параметры ускорителя ИЛУ-10 приведены в таблице 2.

10010002.000000000000000000000000000000	Таблица 2.	Основные	параметры	ускорителя	ИЛУ-10
---	------------	----------	-----------	------------	--------

Параметр	Значение
Энергия электронов, МэВ	2,5–5
Средняя мощность пучка, кВт	50
Средний ток пучка, мА	15
Потребляемая мощность, кВт	150
Вес ускорителя, т	2,9

Образцы устанавливаются на стол ускорителя электронов, который перемещается относительно пучка электронов. Образцы облучались электронами с энергией 2 МэВ, 3 МэВ и 4 МэВ. При этом варьировалась доза облучения от 2 МГр до 9 МГр. Заготовки перемещались в продольном направлении относительно выпускного отверстия. При этом обрабатываемая площадь составила 1000×80 мм². Режимы ЭЛО полимерного материала представлены в таблице 3.

Таблица 3. Режимы ЭЛО образца полимера СВМПЭ на ускорителе ИЛУ-10

№ режима	Энергия пучка, МэВ	Ток пучка, мА	Время экспози- ции, с	Кол-во прого- нов	Доза облучения, МГр
1	2	6,84	30	6	3
2	3	6,84	30	6	3
3	4	6,84	30	4	2
4	4	6,84	30	6	3
5	4	6,84	30	8	4
6	4	6,84	30	10	5
7	4	6,84	30	12	6
8	4	6,84	30	14	7
9	4	6,84	30	16	8
10	4	6,84	30	18	9

Результаты и обсуждение

Результаты механических испытаний на растяжение до и после ЭЛО показаны в таблице 4. Результаты были получены на основе анализа кривых растяжения полимера (рисунок 1).

Таблица 4. Результаты механических испытаний на растяжение СВМПЭ до и после ЭЛО

	Полимер	$\sigma_{\scriptscriptstyle B}$	$\sigma_{\scriptscriptstyle 0,2}$	δ
		МПа		%
	до	22	17,9	300
СВМПЭ	свмпэ после ЭЛО при 2 МГр		18	10

Предел прочности (σ_B) полимера СВМПЭ до облучения составил 22 МПа, предел текучести ($\sigma_{0,2}$) составил 17,9 МПа, после ЭЛО увеличились до 23,9 МПа и 18 МПа, соответственно. Кроме того, относительное удлинение первоначально было до 300%, а после ЭЛО резко снизилось до 10%.



Рисунок 1. Кривые растяжения полимера СВМПЭ до и после ЭЛО при 2 МГр

В результате механических испытаний на растяжение обнаружено, что после ЭЛО прочность полимера СВМПЭ незначительно увеличивается. При облучении пучками заряженных частиц в полимерах возникают промежуточные образования, обладающие высокой реакционной способностью - свободные радикалы, ионы, возбужденные молекулы. Они являются источниками дальнейших химических превращений, приводящих к изменениям химического строения, а следовательно и свойств полимеров [6]. Хотя основные цепные реакции сшивания сопровождаются реакциями разрыва, которые являются основными причинами изменения растягивающего напряжения и удлинения при разрыве в процессе облучения, многие другие факторы, такие как молекулярный вес, степень кристалличности, концентрация свободных радикалов и степень окисления должны быть приняты во внимание. Погрешность измерения также следует учитывать.

Спивание имеет тесную связь с пределом прочности на разрыв, в работе [7] упоминается, что формирование 3D-сети может привести к увеличению прочности на разрыв. Это может быть связано с увеличением слияния молекул и межкристаллических связей [8]. В [9] описано, что свободные радикалы образуются в процессе облучения и могут либо реагировать с кислородом, вызывая разрыв цепей, либо реагировать внутренне, образуя сшивки.

На рисунке 2 приведены результаты измерения твердости полимеров до и после ЭЛО. Исследование полимера СВМПЭ, облученного при дозах выше 5 МГр (энергия пучка 4,5 МэВ) не представлялось возможным в результате радиационного старения полимеров.





На основе анализа полученных результатов обнаружено, что твердость СВМПЭ сравнительно незначительно меняется в исследуемом режиме ЭЛО. Во всех исследуемых режимах облучения при энергиях 3,5 МэВ и 4,5 МэВ и дозе облучении от 2 МГр до 4 МГр твердость полимера СВМПЭ незначительно меняется по сравнению с исходным образцом. Вероятно, это связано с малой толщиной модифицированного поверхностного слоя. Аналогичные результаты были получены и с другими видами полимеров – РАб и PEI [10]. Хотя и незначительно, но все же нам удалось добиться увеличение твердости материала. Эти результаты совпадают с результатами работы [11], в которой также говорится об увеличении твердости СВМПЭ от 0 до 250 кГр. На основе этих результатов было очевидно, что улучшение твердости материала было связано с образованием сшивки, что подтверждается исследованием плотности сшивки и испытанием на растяжение [12, 13].

Результаты изменения температуры плавления, оценка данных для СВМПЭ показаны на рисунки 3 и 4 для первого и второго нагрева. Данные для первого плавления, то есть материала после облучения в твердом состоянии, показывают, что доза облучения почти не влияет на температуру плавления (ТП) СВМПЭ. Это означает, что эффект образования сшивок не является существенным в отношении кристаллической структуры (толщины ламелей) и является практически одинаковым для всех образцов независимо от дозы облучения, что демонстрируется однородная ТП для всех полимеров. С другой стороны, уменьшение ТП, измеренное во время первого плавления для СВМПЭ, указывает на то, что облучение электронами приводит к существенному уменьшению толщины ламелей даже в твердом состоянии. Это может быть объяснено только значительной степенью разрушения поверхности ламелей и ее истончением из-за разрушения полимерных цепей, предположительно, в результате разрыва.

На рисунках 5 и 6 показаны инфракрасные спектры необлученных и облученных образцов полимера СВМПЭ. ИК-спектр был записан в режиме пропускания с разрешением 0,1 см⁻¹. Чтобы обнаружить возникновение сшивания, была проанализирована область спектра между 2000 и 600 см⁻¹, особенно в области двойных винильных связей (растяжение =C=C= для винилиденовой группы около 1647 см⁻¹) и области транс-виниленовых групп (около 965 см⁻¹). Пик при 718 см⁻¹, комбинированная полоса, связанная с вибрацией качания в плоскости =CH₂ [14].

Полосы при 718 см⁻¹ (качающаяся плоскость = CH_2) и 1460 см⁻¹ (ножничная вибрация = CH_2), которые представляют - CH_2 - в СВМПЭ не имеют очевид-

ных изменений, иллюстрируя, что основная структура UHMWPE не претерпела никаких изменений в процессе облучения. Полоса поглощения транс-винилена появляется при 965 см⁻¹ на спектрах облученного СВМПЭ, и ее интенсивность увеличивается с увеличением дозы, в области карбонильных групп (1732 см⁻¹), которая относится к облученному СВМПЭ, пик появляется и становится шире после увеличения дозы облучения. На спектре облученного образца при дозе 2 МГр (рисунок 6) поглощение карбонильных групп (C = O, 1742 см⁻¹) становится шире после облучения. Они показывают, что реакция окисления СВМПЭ с О2 произошла в процессе облучения и после облучения. При окислении образцов полиэтилена включали образование типичных продуктов, как изолированные гидропероксиды таких (3707 см⁻¹), гидроксилы, связанные с Н₂, включая гидропероксид (3626 см⁻¹), лактоны (1860 см⁻¹). Таким образом, такие результаты являются убедительным доказательством того, что окисление UHMWPE происходило в результате химических реакций полиэтиленовой цепи с О₂ [12].



Рисунок 4. Термограмма ДСК облученного СВМПЭ при 2 МГр

ИССЛЕДОВАНИЕ ВЛИЯНИЯ ЭЛЕКТРОННО-ЛУЧЕВОЙ ОБРАБОТКИ ПОЛИМЕРА СВМПЭ НА СТРУКТУРУ И МЕХАНИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА



Рисунок 5. ИК спектры необлученного образца СВМПЭ



Рисунок 6. ИК спектры облученного образца СВМПЭ при дозе 2 МГр

Морфология поверхности для необлученного и облученного полимера изображена на рисунке 7. Видно, что до облучения поверхность имеет однородную сфералитную гомогенную структуру.

В облученной пленке ясно видно, что морфология значительно улучшается, то есть поверхность становится шероховатой, увеличивается глубина неровности и структура сферолитов. Воздействие электронного излучения приводит к существенному изменению морфологии поверхности. После ЭЛО на поверхности наблюдается области агломерации, трещины и поры. На микроуровне формируются сферолиты, состоящие из радиально ориентированных фибрилл. Эти изменения четко указывают на смещение молекул полимера под влиянием облучения. Это, возможно, связано с повышением объёмной поверхности за счет взаимодействия электронов со свободными радикальными группами молекулы полимера и уменьшает интенсивность кристалла [15, 16]. ЭЛО может стимулировать фазовое превращение кристаллических и аморфных фаз, потому что атомы в материале динамически смещаются под воздействием электронного удара при облучении электронным пучком. Облучение может привести к деградации и, следовательно, увеличению энтропии и вызывает изменение фазового перехода. Причиной фазового перехода вызванного облучением, является изменение энтропии и свободной энергии Гиббса [17].



Рисунок 7. РЭМ изображение СВМПЭ до (a) и после облучения при дозе 3 МГр, 4,5 МэВ (б)

Литература

Заключение

На основе полученных экспериментальных данных и их анализа были сделаны следующие выводы:

1. Установлено, что после ЭЛО на ускорителе ИЛУ-10 значительные изменения механических свойств полимера СВМПЭ не наблюдается. Это связано с малой толщиной модифицированного поверхностного слоя.

2. Методом ДСК определены термические характеристики полимерных образцов. Проанализировано влияние облучения на процесс кристаллизации полимера. Также выявлено, что после ЭЛО температура плавления СВМПЭ практически не изменяется.

3. Определено, что во время ЭЛО в образцах СВМПЭ происходит окисление в результате химических реакций полиэтиленовой цепи с О₂. Никаких новых функциональных групп не было создано, видимо, связано с тем, что облучение просто вызвало разрыв связей, чтобы сформировать свободные радикалы, а затем перегруппировать, чтобы вызвать сшивание.

4. Установлено, что ЭЛО приводит к изменению морфологии поверхности, то есть поверхность становится шероховатой, увеличивается глубина неровности и структура сферолитов. На микроуровне формируются сферолиты, состоящие из радиально ориентированных фибрилл. Эти изменения четко указывают на смещение молекул полимера под влиянием облучения.

Настоящая работа выполнена при финансовой поддержке Комитета науки МОН РК по программе «Грантовое финансирование научных исследований» (код проекта AP05134982).

- 1. Mc Kellop H., Shen F., Lu B., Campbell P., Salovey R. Development of an extremely wear-resistant ultra high molecular weight polyethylene for total hip replacements // J. Orthopedic research. 1999. Vol. 17(2). P. 157–167.
- Kim S., Kang P.H., Nho Y.C., Yang O.B. Effect of electron beam irradiation on physical properties of ultrahigh molecular weight polyethylene // J. Appl Polym Sci. – 2005. – Vol. 97. – P. 103–116.
- Urries I., Medel F.J., Rios R., Gomez-Barrena E., Puertolas J.A. Comparative cyclic stress-strain and fatigue resistance behavior of electron-beam- and gamma-irradiated ultrahigh molecular weight polyethylene // Journal of Biomedical Materials Research. – 2004. – Vol. 70B. – P. 152–160.
- 4. Visco A.M., Torrisi L., Campo N., Emanuele U., Trifiro A., Trimarchi M. Mechanical Performance of Electron-Beam-Irradiated UHMWPE in Vacuum and in Air // J Biomed Mater Res Part B: Appl Biomater. – 2009. – Vol. 89B. – P. 55–64.
- Slouf M., Synkova H., Baldrian J., Marek A., Kovarova J., Schmidt P., Dorschner H., Stephan M., Gohs U. Structural changes of UHMWPE after e-beam irradiation and thermal treatment. J Biomed Mater Res Part B: Appl Biomater. – 2008. – Vol. 85B. – P. 240–251.
- 6. Raghu S, Archana K, Sharanappa C, Ganesh S, Devendrappa H. The physical and chemical properties of gamma ray irradiated polymer electrolyte films // Journal of Non-Crystalline Solids. 2015. Vol. 426. P. 55–62.
- Oka T., Kanbe H., Yatagai F., Hama Y., Changes in the chemical structure and the mechanical properties of single-site polyethylene induced by ion-beam irradiation J Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. – 2003. – Vol. 208. – P. 181–184.
- Al-Ali M., Madi N.K., Al Thani N.J., El-Muraikhi M., Turos A., Mechanical and thermal properties of gamma-ray irradiated polyethylene blends // Vacuum. – 2003. – Vol. 70. – P. 227–236.
- 9. V. Premnath, W.H. Harris, M. Jasty, E.W. Merrill Gamma sterilization of UHMWPE articular implants an analysis of the oxidation problem Biomaterials. 1996. Vol. 17. P. 1741–1753.
- 10. Сагдолдина Ж.Б., Туякбаев Б.Т., Маулит А., Кенесбеков А.Б., Исследование влияния электронного облучения на износостойкость полимерных материалов, Поликомтриб-2019, Гомель, Беларусь, 2019, С. 144.
- Sharif J., Aziz S.H.S.A., Hashim K. Radiation effects on LDPE/EVA blends // Radiat. Phys. Chem. 2000. Vol. 58(2) -P. 191-195.

- Kieran A.M., James E. K., Brian McEvoy, Olivier V., Damien R., Richard C., Clement H.L. The effects of high energy electron beam irradiation in air on accelerated aging and on the structure property relationships of low density polyethylene // Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. – 2013. – Vol. 297. – P. 64–74.
- 13. Dongliang D., Meiwu Sh., Effects of electron beam irradiation on structure and properties of ultra-high molecular weight polyethylene fiber // Journal of Industrial Textiles. 2017. Vol. 47. P. 1357–1377.
- Tretinnikova O.N., Ogataa S., Ikada Y. Surface crosslinking of polyethylene by electron beam irradiation in air // Polymer. 1998. – Vol. 39(24). – P.6115–6120.
- Feulner R., Brocka Z., Seefried A., Kobes M.O., Hülder G., Osswald T.A., The effects of e-beam irradiation induced cross linking on the friction and wear of polyamide 66 in sliding contact // Wear. – 2010. – Vol. 268. – P. 905–910.
- 16. Shifeng Zhu, Meiwu Shi1, Meifang Zhu, Effects of Electron-Beam Irradiation Crosslinking on PA6 Fibers // Fibers and Polymers. 2013. Vol. 14(4). P. 525–529.
- 17. Nagase T., Nino A., Hosokawa T., Umakoshi Y. Phase Stability of an Amorphous Phase Against Electron Irradiation Induced Crystallization in Fe-Based Metallic Glasses // Materials transactions. 2007. Vol. 48(6). P. 1340–1349.

ӨЖМПЭ ПОЛИМЕРІН ЭЛЕКТРОНДЫ-СӘУЛЕЛІ ӨҢДЕУДІҢ ҚҰРЫЛЫМЫ МЕН МЕХАНИКАЛЫҚ ҚАСИЕТТЕРІНЕ ӘСЕРІН ЗЕРТТЕУ

¹⁾ Б.К. Рахадилов, ¹⁾ Ж.Б. Сагдолдина, ²⁾ Л.Б. Баятанова, ²⁾ К.Б. Рахымжанова, ¹⁾ А.Қ. Сәндібек

¹⁾ С. Аманжолов атындағы Шығыс Қазақстан мемлекеттік университеті, Өскемен, Қазақстан ²⁾ Д. Серікбаев атындағы Шығыс Қазақстан мемлекеттік техникалық университеті, Өскемен, Қазақстан

Осы жұмыста өте жоғары молекулалық полиэтиленнің (ӨЖМПЭ) құрылымы мен механикалық қасиеттеріне электрондық-сәулелі өңдеудің (ЭСӨ) әсерін зерттеу бойынша жұмыстардың нәтижелері ұсынылған. ӨЖМПЭ үлгілерінің ЭСӨ ИЛУ-10 өнеркәсіптік импульстік үдеткішінде жүзеге асырылды. Электрондар энергиясы 2,5–4,5 МэВ шегінде өзгеріп, ал сәулелену мөлшері 2–9 МГр шегінде өзгеріп отырды. Дифференциалды-сканерлеу калориметрия әдісімен полимерлік үлгілердің термиялық сипаттамалары анықталды. Сәулеленудің полимердің кристалдану процесіне әсері талданды. Қаптаманың пайда болу әсері кристалдық құрылымға (ламельдердің қалыңдығына) қатысты маңызды емес және сәулелену дозасы ӨЖМПЭ балқу температурасына әсер етпейді.Алынған инфрақызыл спектрлер ЭСӨ кезінде ӨЖМПЭ үлгілерінде оттегі бар полиэтилен тізбегінің химиялық реакциялары нәтижесінде тотығу болатынын көрсетті. ЭСӨ бетінің морфологиясының өзгеруіне әкеледі, яғни беті кедір-бұдыр болып, сферолиттердің тегіс емес тереңдігі мен құрылымы артады. Механикалық сынаулар нәтижелері ЭСӨ-дан кейін ӨЖМПЭ беріктігі мен қаттылығы шамалы ұлғаятынын көрсетті.

INVESTIGATION OF THE EFFECT OF ELECTRON-BEAM PROCESSING OF UHMWPE POLYMER ON THE STRUCTURE AND MECHANICAL PROPERTIES

¹⁾ B.K. Rakhadilov, ¹⁾ Zh.B. Sagdoldina, ²⁾ L.B. Bayatanova, ²⁾ K.B. Rahymzhanova, ¹⁾ A.K. Sandibek

¹⁾ Sarsen Amanzholov East Kazakhstan state university, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan ²⁾ D. Serikbayev East Kazakhstan state technical university, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

This work presents the results of research on the influence of electron beam processing (EBP) on the structure and mechanical properties of ultrahigh molecular weight polyethylene (UHMWPE). EBP of UHMWPE samples was carried out on an industrial pulse accelerator ILU-10. The electron energy varied in the range of 2.5–4.5 MeV, and the radiation dose varied in the range of 2–9 MGy. Thermal characteristics of polymer samples were determined by differential scanning calorimetry. The influence of irradiation on the polymer crystallization process is analyzed. It was discovered that the effect of crosslinking is not significant about the crystal structure (thickness of the lamellae) and the radiation dose almost does not affect the melting temperature of UHMWPE. The obtained infrared spectra showed that during EBP, the UHMWPE samples occur oxidation as a result of chemical reactions of the polyethylene chain with oxygen. Installed, that EBP leads to a change in the surface morphology, that is, the surface becomes rough, the depth of irregularity and the structure of spherulites increases. The results of mechanical tests showed that after EBP, the strength and hardness of UHMWPE increase slightly.

УДК 621.039

РЕАКТОР СИНТЕЗА НА ВСТРЕЧНЫХ ПУЧКАХ

Котов В.М.

Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Работа посвящена проблеме создания ядерных энергетических реакторов на основе реакций синтеза легких элементов. В настоящее время эта проблема прорабатывается в вариантах термоядерных реакторов, работающих с высокотемпературной плазмой. В таких реакторах плазма изолируется от стенок реакционной камеры с помощью магнитного поля. Даже в перспективных проектах термоядерных реакторов температурный режим далек от условий обеспечения оптимальных сечений взаимодействия исходных ядер. Несмотря на многолетние работы задача эффективной изоляция плазмы решается с трудом. Растут размеры реакционных камер, прогнозируемые затраты на создание эффективного реактора, даже в варианте с дейтерий-тритиевого реакцией, имеющей максимальное сечение и минимальную энергию взаимодействующих ядер. В статье рассмотрен вариант реактора синтеза, основанный на взаимодействии встречных пучков ионов в тороидальном магнитном поле. Такое решение обеспечивает снижение затрат на инициацию реакции, решает задачу эффективного удержания взаимодействующих ядер в реакционной камере. На примере реакций **D–D**, **D–T** и **D–**³**He** показаны реакторы на их основе с малыми потерями энергии и небольшими габаритами.

Введение

Преимущества реакций синтеза легких ядер в отношении количества выделяемой энергии на единицу массы топлива, экологических свойств в ходе работы и в долговременных последствиях перед реакциями деления тяжелых ядер (тем более сжиганием органического топлива) хорошо известны. Однако, практическое использование данных реакций столкнулось со многими трудностями. В области ядерного оружия применение термоядерных зарядов удалось реализовать, хоть и позже, но достаточно быстро.

Исследование возможностей реализации мирного использования реакций синтеза затянулось на многие десятилетия, несмотря на огромные финансовые вложения ряда стран – участниц. Причем ожидаемые результаты выглядят не блестяще по соотношению затрат к получаемому эффекту [1].

Особенностями проводимых разработок проектов реакторов синтеза является реализация подобия используемых в них реакций реакциям в недрах звезд, проходящих при высоких температурах – создание так называемых управляемых реакций термоядерного синтеза. В настоящее время исследования ведутся по нескольким направлениям. Основным можно считать реализацию термоядерной реакции в магнитном поле, сдерживающем в заданном объеме плазму. Предлагаемые варианты конфигурации магнитного поля существенно отличаются друг от друга [2–4]. Достаточно интенсивно ведутся работы с использованием лазерного излучения для нагрева до значимой величины мишени, содержащей исходные нуклиды [5], работы по инерционному сжатию мишеней [6].

Рассмотрим возможности пути, основанном на отходе от прямого копирования природных процессов – создании реактора на встречных пучках реагирующих компонент.

1. Особенности реактора на встречных пучках

Возможная схема реактора на встречных пучках (рисунок 1) и некоторые характеристики этого реактора представлены в [7].



Рисунок 1. Схема линейного D-T реактора на встречных пучках ионов

В данном реакторе взаимодействие ядер дейтерия и трития происходит на двух линейных участках. Линейные участки окружены слоем лития (вблизи поверхности реакционных каналов) и тяжелой водой. Это способствует эффективному взаимодействию нейтронов с литием и получению, в конечном счете, сырьевого трития.

Возврат ядер дейтерия и трития с выхода одного участка на вход другого участка проводится в магнитном поле. Скорость трития в каналах реактора устанавливается отличной от скорости дейтерия, что способствует возможности разделения ядер дейтерия и трития в магнитном поле.

Вероятность взаимодействия дейтерия с тритием зависит от плотности потоков их ионов. Поэтому, для получения высокой скорости взаимодействия исходных ядер в реакции синтеза при заданном потоке ионов (того и другого типа) желательно использовать пучки ионов с достаточно малым поперечным сечением потока ионов. Рассмотрим потенциальные достоинства и недостатки данной схемы реактора синтеза.

1.1 Достоинства реактора на встречных пучках

Важным достоинством данной схемы, в отличие от термоядерных реакторов, является получение строго заданного типа реакции на ядрах различного типа, таких, как D–T и D–³He. Это важно в большей степени для реакции D–³He. В термоядерном реакторе на смеси D и³He будут идти три типа реакций: D–D, D–³He и ³He-³He. Реакция D–D будет «поставлять» в такой реактор нейтроны, ухудшающие экологическую чистоту «основной» реакции - D–³He. В реакторе на встречных пучках будет происходить только заданная реакция, обусловленная типом ядер во встречных пучках.

Достоинством приведенной схемы является простота реакционного пространства, окружающего прямолинейные участки со встречными пучками. Отсутствие магнитной системы в зоне реакции позволяет оптимизировать получение энергии из потока нейтронов и производство трития.

В данной схеме аналогом разогрева плазмы в термоядерном реакторе является использование ускорителей ионов. По эффективности процесса получения высоких скоростей ионов схема на встречных пучках имеет определенные преимущества, особенно учитывая тот факт, что ускоренные ионы будут многократно обращаться в реакционной зоне до взаимодействия. В термоядерном реакторе необходимо проводить мгновенный разогрев всего количества топлива в реакционной камере.

1.2 Недостатки приведенной схемы

Определенным недостатком приведенной схемы является ее сложность – наличие четырех магнитных разделителей на каждый тип ионов. Для эффективной работы реактора требуется совместная регулировка параметров работы всех разделителей потоков ионов. Наибольший недостаток приведенной схемы является электрическое и магнитное взаимодействие ионов исходных продуктов. Большие силы, действующие на ионы в направлении вывода их из пучка, связаны с высокой требуемой плотностью ионов. По оценкам, скорость выхода из пучка может на несколько порядков превышать скорости ионов в продольном направлении (расчеты см. в гл. 4.4).

Приемлемые характеристики реактора синтеза на основе D–D может обеспечивать подача напряжения на корпус, ограничивающий потоки ионов. При отсутствии такого потенциала пучки ионов с заданными характеристиками создать невозможно. Создание корпуса под электрическим потенциалом, изоляция его от других элементов реактора, усложняют конструкцию, требует создание схемы регулировки напряжения в соответствии с параметрами работы реактора. Особенно на режимах с изменением мощности реактора.

2. Совершенствование линейного реактора на встречных пучках

Совершенствование линейного реактора на встречных пучках с целью уменьшения до нуля компенсационного потенциала на корпусе, ограничивающем потоки ионов, возможно на основе особенности работы разрабатываемых термоядерных реакторов. Таким решения является ввод электронов в потоки ионов с равной плотностью зарядов. Для устранения процессов слияния ионов с электронами необходимо обеспечить различие скоростей ионов и электронов на уровне большем энергии ионизации атомов. Естественно, что поперечные сечения потоков ионов и электронов должны быть равными и сопряженными в пространстве.

2.1 Достоинства

Ввод в поток ионов электронов с равной плотностью и поперечным сечением потоков обеспечивает отсутствие электрического потенциала на участках проведения ядерных реакций.

2.2 Недостатки

Недостатком такого решения является усложнение систем разделения потоков ионов за счет необходимости введения системы разделения потоков ионов и потоков электронов. Более того, отсутствие электронов в местах перемещения ионов от одного прямолинейного участка к другому прямолинейному участку создаст высокий потенциал в данных местах. А как создать одинаковые плотности ионов и электронов на криволинейных участках поворота ионов в магнитном поле не совсем ясная задача.

Если на участках поворота поддерживать плотность потока ионов за счет высокого потенциала на ограничивающем корпусе, то усложняются конструкторские решения, усложняется задача поддержания необходимого потенциала в переходные периоды.



Рисунок 2. Схема D-Т реактора на встречных пучках ионов на основе токамака

3. РЕАКТОР НА ВСТРЕЧНЫХ ПУЧКАХ В ТОКАМАКЕ

Проблему поддержания встречного движения реагирующих ионов, присущую ректору с прямолинейными реакционными участками, можно устранить использую схему удержания плазмы в тороидальном магнитном поле. Схема основных элементов такого реактора представлена на рисунке 2.

Реактор содержит тороидальный магнитопровод с малым поперечным сечением магнитного потока в сравнении с магнитопроводом токамака термоядерного реактора. Теоретически, для обеспечения необходимой траектории ионов, сечение магнитного потока может быть лишь немного большим сечения потоков ионов. Однако, для передачи тепловой энергии реакции синтеза, необходимо иметь достаточно большую внутреннюю поверхность стенок полости магнитного потока.

Для устранения проблем с высоким потенциалом на поверхности вводимых пучков ионов заданного сечения ускорители ионов сопряжены с ускорителями электронов.

На рисунке 2 не представлены такие элементы, как внутренняя герметичная стенка полости магнитопровода, системы обеспечения герметичности, сбора продуктов реакции, и многое другое, не относящееся к основам технологии работы данного реактора.

3.1 Потенциальные достоинства тороидальной конструкции

Потенциальные достоинства реактора на встречных пучках на основе токамака в сравнении с линейным вариантом хорошо видны из сравнения рисунков 1 и 2. Это простота конструкции, меньшее количество элементов, малые габариты.

В тороидальной конструкции обеспечивается автоматическая стабилизация траектории пучков ионов и электронов по оси тора.

3.2 Сравнение термоядерного реактора и реактора на встречных пучках на основе токамака

Процессы в термоядерном реакторе и реакторе на встречных пучках на основе токамака имеют существенные отличия.

В термоядерном реакторе инициация реакции синтеза осуществляется за счет разогрева исходных продуктов. В ходе разогрева исходные ядра получают существенный разброс по энергии, векторам скоростей.

В современных проектах предварительный разогрев обеспечивает для пары взаимодействующих ядер максимальные скорости меньшие, чем требуется для получения максимального сечения реакции.

В реакционном объеме в реакторах с различными ядрами (D–T, D–³He) присутствуют ядра обеих типов. Столкновения, требуемые для необходимой реакции происходят частично. Присутствуют неосновные продукты реакции. В реакторе D-³He будет существовать реакция D–D с получением нейтронов, ухудшающая экологические характеристики основного процесса.

Удержание исходных продуктов в рабочем объеме для термоядерного реактора усложняется наличием ядер, вектор скорости которых направлен к стенке. Для получения необходимых параметров удержания требуется большой объем реакционной полости.

Габариты реакционной полости задают большие значения мощностей, требуемых для разогрева плазмы и для получения требуемых напряженностей магнитного поля токамака.

Наличие разброса векторов скоростей исходных ядер и продуктов реакции требует создания дополнительных корректирующих магнитных полей, усложняющих конструкцию реактора. Плазма токамака подвержена большому количеству неустойчивостей, турбулентна по своей природе. Хотя теория и численное моделирование процессов предсказывают или объясняют ряд основных явлений, сегодня нет возможности полностью рассчитать токамак [8].
В реакторе на встречных пучках инициация осуществляется за счет применения ускорителей ионов.

Проводится столкновение реагирующих ядер со скоростью, обеспечивающей максимальное (или оптимальное по ряду причин) сечение реакции.

Проводится строго заданная реакция. В реакторе D-³Не будут отсутствовать отрицательные для экологии эффекты.

В реакторе на встречных пучках удержание исходных ядер осуществляется на заданной траектории без особых проблем.

Удержание продуктов реакции в реакционной полости такого реактора для поддержания температуры плазмы не требуется. Наоборот, желательно, чтобы они уходили на стенки камеры.

Взаимодействие нейтронов с литием для получения трития в реакциях D-D и D-T в термоядерных реакторах и реакторах на встречных пучках имеет схожие проблемы. Меньшие габариты катушек магнитопровода для реакторов на встречных пучках облегчают решение этой задачи.

4. ХАРАКТЕРИСТИКИ ДЕМОНСТРАЦИОННОГО РЕАКТОРА

4.1 Конструктивные особенности

Особенность реакторов на встречных пучках ионов в тороидальном магнитном поле является малое поперечное сечение потоков ионов, и возможность снижения благодаря этому затрат энергии на создание требуемой напряженности магнитного поля. Однако, малая поверхность окружающего рабочую полость корпуса не обеспечивает возможность передачи тепловой энергии к теплоносителю. Требуется компромисс.



1 - корпус реактора, 2 - канал реактора (корпус, обмотки магнитопровода), 3 – теплоноситель (вода), 4 – литиевый поглотитель нейтронов

Рисунок 3. Элементы многовиткового реактора с максимальной мощностью 100 МВт

В любом случае, потребуется увеличение отношения диаметра траектории пучков ионов (внешнего диаметра) к диаметру поперечного сечения корпуса рабочей полости. Здесь возможны два пути:

 увеличение внешнего диаметра стенки при заданном диаметре поперечного сечения пучка ионов:

 увеличение числа рабочих полостей с индивидуальными реакционными полостями;

 создание змеевиковой конструкции, обеспечивающей приемлемые габариты реактора.

На рисунке 3 представлен вариант демонстрационного змеевикового тороидального реактора на встречных пучках ионов тепловой мощностью 100 MBt.

4.2 Расчет тепловой мошности

Максимальную мощность канала Wl такого реактора можно оценить по следующей формуле:

$$Wl = Ws + Wv$$
,

где: Ws – допустимое энерговыделение на поверхности стенки канала от ядер – продуктов реакции; Wv – энерговыделение в воде от замедления нейтронов.

Примем для реактора D-T Ws = 0.5 MBt/m^2 , и $Wv = Wn * E\gamma / E\alpha = 2.0 MBT/M^2$.

Здесь: Wn – энергия нейтронов, получаемая в реакции, Еα – энергия ядер гелия.

Соответственно, допустимое значение энергии, принимаемой в расчете на единицу поверхности, составит 2.5 MBт/м².

Для учета энергии получаемой в результате реакций нейтронов с литием и количества получаемого трития необходим точный нейтронно-физический расчет на основе конструкции элементов реактора, изотопного состава лития. Особенностями процесса является то, что реакция нейтронов с ⁶Li – экзотермическая, а реакция с ⁷Li – пороговая, эндотермическая, но зато, с образованием дополнительного нейтрона в ходе реакции.

4.3 Расчет динамики работы реактора

Для определения характеристик такого реактора можно использовать конечно-разностное решение уравнения динамики реакции с помощью компьютерных программ. Основа решения на языке QBasic представлена ниже:

N

где: t – текущее время работы реактора, сек; H – длительность работы, сек; Id – ток ускорителя, ядер/сек; Nt - ток «прямых» ионов в реакционной камере, ядер/сек; Ub – скорость взаимодействия, ядер/сек; In – ток «встречных» ионов в реакционной камере, ядер/сек; Ver - вероятность взаимодействия одиночного ядра; Sr – сечение реакции, см²; Sech – поперечное сечение пучка ионов, см²; Ег – энергия выделяемая в одном акте реакции, Дж; W - мощность реактора, Вт; V – объем, занимаемый пучком ионов в реакционной камере, см³; х – среднее расстояние между ионами в пучке, см.

На основе данных, представленных на рисунке 3, в таблицах 1 и 2 приведены расчетные характеристики реакторов D–D, D–T и D–³He с мощностью на стационарном режиме, равной 100 МВт.

N⁰	Параметр	Значение
1	Длина окружности траектории пучков ионов, м	18,9 * 13
2	Радиус поперечного сечения корпуса, м	0,025
3	Площадь поверхности реакционной камеры, м ²	38,0
4	Расчетный тепловой поток Ws, MBт/м ²	0,5
5	Расчетный тепловой поток Wv реактора D–T, МВт/м ²	2,0
6	Сечение медного провода обмотки тороида, мм х мм	5 x 15
7	Число витков обмотки, шт.	49000
8	Сопротивление обмотки, Ом	1,86
11	Ток в обмотке магнитопровода, А	7300
12	Магнитная индукция, Тесла	1,84
13	Мощность потерь в обмотке, МВт	100,0

Таблица 1. Характеристики демонстрационного
реактора на встречных пучках

На рисунке 4 приведены данные для работы ректоров с максимальным сечением реакций. Для реакторов D–D в этом случае получается высоким значение мощности ускорителей.

Для реакции D–D имеется пологая зависимость сечения при изменении скорости столкновения компонент. Были проведены расчеты для варианта этого реактора с уменьшением энергии столкновения с 2 МэВ до 0,14 МэВ. Динамика модифицированного реактора осталась практически неизменной. При небольшом увеличении тока ускорителей их мощность снизилась в 6,4 раза.

При выбранных значениях токов ускорителей и поперечных сечений пучков ионов в реакторах D–D происходит наибольшее накопление ядер в реакционном пространстве к завершению 6-ти минутной работы, когда его мощность является стационарной.

На стационарной работе, после выхода на заданный уровень мощности, необходимо поддерживать ток ускорителей равным величине убыли ионов (в том числе от прочих процессов) в результате осуществления заданных реакций.

Таблица 2. Параметры реакторов D–D, D–T, D–³He

Параметр \ Реакция	D-D 1	D-D 2	D-T	D–3He
Сечение реакции, барн	0,2	0,1	5,0	0,8
Поперечное сечение пучка, см ²	1,	0	5,0	1,0
Ток ускорителя, А	28,9	32,06	5,97	5,91
Энергия ионов, МэВ	1,0	0,14	0,06	0,25
Мощность ускорителя, МВт	28,9	4,5	0,358	1,48
Максимум концентрации, моль	0,049	0,069	0,01	0,0106
Выход на стационар, минут	6,	0	4,8	5,4

При отключении ускорителей ионов мощность реактора будет спадать со скоростью равной убыли реагирующих ядер в соответствии с их плотностью в конкретный момент времени. Эта характеристика представлена на рисунке 5. Спад мощности ректоров до уровня 1–2% от стационарного значения происходит в течение 25 минут. Различия характеристик спада для различных реакций незначительны. Максимальные различия наблюдаются к концу спада. При этом, максимальная мощность принадлежит реакции D–D с минимальным сечением взаимодействия, минимальная – реакциям D–T и D–D с максимальным сечением взаимодействия.



Рисунок 4. Изменение мощности реакторов D–D, D–T, D–³Не в ходе работы



Рисунок 5. Изменения мощности при выходе из стационарного режима

В представленном демонстрационном реакторе выделяемая мощность за счет реакции синтеза D–T равна мощности, расходуемой на питание тороидального электромагнита. При этом магнитная индукция равна 1,84 Тесла, что меньше принимаемой в проектах термоядерных реакторов. Выход на большие значения магнитной индукции (если потребуется) и меньшие потери энергии на питание магнита возможен при использовании сверхпроводящей обмотки магнита. Тепловые потери при поддержании криогенной температуры обмотки оцениваются значительно меньшими, чем потери мощности в медной обмотке.

Реакторы D–D с малым сечением взаимодействия имеют приемлемые технические характеристики и могут представлять интерес в качестве поставщиков сырьевого ³Не для экологически чистых реакторов D–³He, которые могут получить широкое применение на транспортных средствах, вплоть до авиационных.

Реакторы D–T обеспечивают собственное расширенное воспроизводство трития за счет реакции нейтронов с литием.

4.4 Оценка сил электромагнитного взаимодействия ионов

Расчет действия зарядов в пучке ионов (при отсутствии электронов в пучке) на ион внешнего слоя проводился в грубом приближении, что поток ионов расположен линейно на бесконечно длинной оси траектории. Сила, действующая на единичный заряд q будет определяться в соответствии с [9]:

$$\mathbf{F} = \mathbf{C}_{\mathbf{L}} / 2 * \pi * \varepsilon * \mathbf{x} * \mathbf{q},$$

где: C_L – линейная плотность зарядов, кулон/метр; є – электрическая постоянная; q – заряд электрона, кулон; х – расстояние от единичного заряда до оси.

Значения энергии, получаемой ядром дейтерия при движении от поверхности потока ионов к стенке тороидальной камеры, для вариантов работы реактора на стационарном уроне мощности (по таблице 2) представлены в таблице 3. Там же показаны приведенные значения давления в потоке ионов, соответствующее их плотности при температуре 300 К.

Таблица 3. Характеристики поля потока ионов в стационарном режиме

Тип реактора Параметр	D–D max	D–D optim	D-T	D–3He	Ускоритель D–T
Энергия вывода дейтерия, МэВ	621255	874829	52056	159380	0,00016
Давление при- веденное, ата	0,045	0,063	0,0018	0,0097	-

Энергия, получаемая ионами в поле их пучка в тороиде, превышает на много порядков максимальную энергию синтеза рассмотренных реакций. Понятно, что такой вариант потока ионов в тороидальном, и любом другом типе реактора, не работоспособен. При предлагаемом совместном движении ионов реагирующих ядер с электронами действие зарядов ионов будет нейтрализовано.

В потоке ионов дейтерия на выходе ускорителя энергия выхода внешнего иона при той же геометрии канала незначительна. Это определяется свободным движением ионов в отличие от их движения в замкнутом торе, соответственно их малой плотностью. Отметим, что сила взаимодействующих токов ионов противоположного направления движения также приводит к выносу ионов из их потока. Однако, величина этой силы на несколько порядков меньше электростатической силы.

5. ПРОБЛЕМОЙ для тороидальных реакторов со встречными пучками ионов может явиться передача тепловой энергии на стенки каналов при остановке реактора в случае высокой доли продуктов реакции, захваченных магнитным полем тороида. В этом случае возможные решения:

 ввод делителей потоков ионов различных энергий в некотором разрыве траектории ионов с возвратом «низкоэнергетических» ионов (и электронов) на рабочую траекторию;

 ограничение интеграла мощности при непрерывной работе реактора.

Минимальный эффект этого процесса будет в реакции D–T, где доля энергии, уходящей с нейтронами непосредственно в теплоноситель наибольшая.

Пока нет уверенности в том, что распределение ядер-продуктов реакции будет равномерным по азимуту относительно оси пучков ионов. В случае неравномерности будет снижена допустимая мощность реактора при выбранной его геометрии.

Заключение

Предложена схема ядерного реактора синтеза легких элементов на основе взаимодействия встречных пучков ускоренных ионов со стабилизацией их траектории в магнитном поле тороидального магнитопровода и совместном движении с электронами.

Проведено сравнение достоинств и недостатков предложенной схемы со схемой термоядерного реактора на базе токамака. Показаны потенциальные преимущества предложенного решения.

Рассмотрен вариант «демонстрационного» реактора с максимальной мощностью 100 МВт, проведены расчеты его характеристик на основе трех типов реакции: D–D, D–T и D–³He. Показано, что реактор D–D с энергией столкновения исходных ядер 2,0 МэВ (максимальное сечение реакции) требует много больших потерь в ускорителе, чем с энергией 0,14 МэВ.

Имеются задачи, требующие экспериментальных проработок. Можно ожидать, что их решение не будет столь долговременным и дорогостоящим, как работы по термоядерной тематике.

ЛИТЕРАТУРА

- 1. Орлов В.В., Пономарев Л.И. Ядерные проблемы термоядерной энергетики. // Атомная энергия. Т.124, вып. 2, февраль 2018.
- 2. Б.Б. Кадомцев. От МТР до ИТЕР, // УФН. 1996. Т. 166, № 5, С. 449-458.
- 3. Л. Спитцер, Стелларатор. // УФН. 1960. Т. LXXI, вып.2, С. 327-338.
- 4. В.Тучков. Соперники токамака, //news.students.ru/index.php?newsid=4015
- 5. А.М. Прохоров, С.И. Ансимов, П.П. Пашинин. Лазерный термоядерный синтез // УФН. 1976. Т. 119 вып. 3, С. 401-424.
- Калмыков Ю.К., Комин А.В., Кривошеев М.В. Термоядерные реакторы с инерционным удержанием, Обзор ОСА-65. М.: ЦНИИАтоминформ, 1984.
- 7. Котов В.М., Котов С.В. Реакторы синтеза с использованием ускорителей ионов. // Вестник НЯЦ, 2019, вып. 4, с. 91–97.
- 8. Молчанов П.А. История научных исследований в области управляемого термоядерного синтеза. Электронный ресурс. http://docme.ru/download/178483. Дата обращения 04 12 2018.
- 9. Б.М. Яворский, А.А. Детлаф. Справочник по физике для инженеров и студентов ВУЗов. // М. Издательство «Наука», 1968 г. 939 с.

ҚАРАМА-ҚАРСЫ ШОҚТАРДАҒЫ СИНТЕЗ РЕАКТОРЫ

В.М. Котов

ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Бұл жұмыс жеңіл элементтер синтезінің әсері негізінде ядролық энергетикалық реакторларды құру проблемасына арналған. Бүгінгі күні бұл проблема жоғары температуралық плазмамен жұмыс істейтін термоядролық реакторлар түрінде пысықталып жатыр. Бұндай реакторларда плазма магниттік өрістің көмегімен реакциялық камераның қабырғаларынан оқшауланады. Тіпті термоядролық реакторлардың перспективалық жобаларында температуралық режим бастапқы ядролардың өзара әрекеттесуінің оңтайлы қимасын қамтамасыз ету жағдайынан алыс. Көп жылғы жұмыстарға қарамастан, плазманы тиімді оқшауландыру міндеттері қиындықпен шешілуде. Тиімді реакторды өзара әрекеттесуші ядролардың максималды қимасы және минималды энергиясы бар, дейтерий-тритийлі реакция нұсқасында да құру үшін болжамдалған шығындар, реакциялық камералардың өлшемдері өсуде. Мақалада иондардың қарама-қарсы шоқтарының тороидті магниттік өрістерде өзара әрекеттесуіне негізделген синтез реакторының нұсқасы қарастырылған. Бұндай шешім реакцияның бастамалауына арналған шығындарды төмендетуді қамтамасыз етеді, өзара әрекеттесуші ядроларды реакциялық камерада тиімді ұстау міндетін шешеді. **D–D, D–T** және **D–**³**Не** реакциялары мысалында, осылардың негізінде энергияны аз жоғалтатын және габариттері үлкен емес реакторлар көрсетілген.

FUSION REACTOR ON COLLIDING BEAMS

V.M. Kotov

Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Republic of Kazakhstan

The paper is devoted to the problem of constructing nuclear power reactors based on the synthesis of light elements. This problem is currently subject to assessment under options of thermonuclear reactors operating with high-temperature plasma. In such reactors, plasma is isolated from the walls of the reaction chamber using a magnetic field. Even in advanced designs of thermonuclear reactors, temperature regime is far from the conditions for ensuring optimal interaction cross sections of the source nuclei. Despite many years of work, the task of efficient plasma isolation is difficult to solve. The size of the reaction chambers increases, predicted costs of constructing an effective reactor, even in version with the deuterium-tritium reaction, which has a maximum cross section and minimum energy of interacting nuclei. The article considers a version of the fusion reactor based on the interaction of colliding ion beams in a toroidal magnetic field. This solution provides a cost cutting to trigger the reaction, address the problem of effective retaining of interacting nuclei in the reaction chamber. An example with **D–D**, **D–T** and **D–**³He reactions shows reactors based on them with low energy losses and small dimensions.

УДК 631.41:504.53:614.876: 546.11.02.3

МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

Сержанова З.Б., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Тимонова Л.В., Раимканова А.М.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье представлены методические подходы для исследования форм нахождения ³Н в почве. Проведена оценка качества и эффективности метода автоклавного разложения, используемого для выделения связанных форм ³Н. Для оценки влияния матричной структуры на процесс извлечения ³Н в качестве образцов использовались почва и цеолит. В ходе эксперимента для оценки полноты извлечения и влияния содержания ³Н использовался изотопный индикатор различной активности – от 100 до 100 000 Бк/л. Все эксперименты проведены в нескольких повторностях. На каждой из стадий эксперимента для оценки его «чистоты» проведен холостой опыт.

Показано, что эффективность данного метода составляет порядка 27–48%. Установлено, что значительные потери связаны с неполным вскрытием матрицы и особенностями проведения анализа. Выявлено, что матричная структура и содержание ³Н не влияют на эффективность извлечения связанных форм ³Н из почвы. Авторами предложен ряд подходов для повышения эффективности метода, такие как изменение соотношения реагентов и исключение стадии центрифугирования.

Введение

В результате проведения большого количества ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) в окружающую среду поступило значительное количество радионуклидов, в том числе трития (³H). Высокие концентрации ³Н зафиксированы во всех объектах природной среды – почве, воде, растениях, воздухе. Имеющиеся данные об уровнях концентрации ³Н не только местах проведения ядерных испытаний, а также на прилегающих к ним участках, говорят о том, что ³Н может мигрировать на большие расстояния вследствие его перераспределения между компонентами экосистем. Так как почва является первичным звеном в биологической цепочке, необходимо провести более детальное изучение характера загрязнения тритием почв в местах проведения ядерных испытаний на СИП.

Большое количество ядерных испытаний неодинаковой мощности и характера привели к образованию различных форм трития в почвах. Так как ³Н изотоп водорода, очевидно, что он будет содержаться в почве в тех же формах, что и водород. Известно, что водород в почве содержится в составе свободной воды и в структуре кристаллической решетки [1–4].

Свободная вода, которая присутствует в минеральных массах, не принимает прямого участия в строении кристаллической решетки минералов. Она представляет собой почвенный раствор, заполняющий поровое пространство, и характеризуется различной силой связи с почвой. В свободной воде ³H, как и водород, может содержаться в двух формах – в поверхностно-адсорбированной и в межслоевой воде. Поверхностно-адсорбированная вода – это вода, сорбированная на поверхности почвенных частиц, обладающих определенной поверхностной энергией за счет сил притяжения, имеющих различную природу. При соприкосновении почвенных частиц с молекулами воды последние притягиваются этими частицами, образуя вокруг них пленку. Удержание молекул такой воды происходит в данном случае силами сорбции. В большей своей части легко удаляется при нагревании до 100-110 °C [5]. В некоторых типах грунтов встречается межслоевая вода. Молекулы этой воды располагаются в несколько слоев между нейтральными слоями кристаллической решетки. Установлено, что молекулы воды не занимают строго определенного положения в кристаллической решетке, а располагаются в ней лишь в свободных полостях – межслоевых пространствах. При нагревании она выделяется в интервале температур 80-400 °C в зависимости от типа минералов [1, 2, 6]. Молекулы межслоевой воды характерны для некоторых минералов слоистой структуры, а точнее глинистых пород.

Также, ³Н может содержаться в структуре кристаллической решетки минерала, замещая водород в составе различных соединений. В структуре кристаллической решетки ³Н удерживается прочными силами связи и по этой причине его называют связанным ³Н. Связанный ³Н может быть представлен в виде гидроксильного, органически связанного и кристаллически связанного (прочносвязанного) ³Н [7].

Гидроксильный ³Н (химически связанная вода) входит в состав минералов либо в виде гидроксильных групп (Fe(OH)₃, A1(OH)₃, Ca(OH)₂), либо в виде целых молекул (например, гипса (CaSO₄ * 2H₂O), мирабилита (Na₂SO₄ * 10H₂O) и др.). Такие формы выделяются при нагревании грунта до температуры 400–600 °С, в зависимости от типа минерала и не принимают непосредственного участия в физических процессах, протекающих в почве и растениях [8].

Важнейшей составляющей частью почвы является органическое вещество – это остатки многочисленных микроорганизмов (бактерий, актиномицетов, грибов, водорослей), представителей почвенной микро- и мезофауны (простейших, насекомых, червей и пр.) и, наконец, останки растений [5]. Водород является наиболее распространенным элементом, присутствующим в большинстве таких природных компонентов. В большинстве случаев водород химически связывается как углеводород, углевод или вода. Если ³H присутствует в образцах, имеющих в своем составе водород, то атомы ³H будут обмениваться с атомами водорода с образованием молекулы, содержащей тритий [9]. В случае органически связанного трития (ОСТ), атом ³H связывается с углеродом, серой, кислородом и атомом азота посредством обмена или ферментативно катализируемой реакцией [10].

Кристаллически связанный ³Н может нарабатываться на легких элементах в результате реакции активации. Например, в результате ядерных реакций типа:

${}^{6}\text{Li}_{3} + n \rightarrow {}^{4}\text{He}_{2} + {}^{3}\text{H}$

В свою очередь, кристаллически связанный ³Н, по природе образования, подразделяется на активационный и конденсационный ³Н. Тритий в ненарушенных кристаллических структурах, в случае его образования в результате выше описанной реакции, является активационным. Конденсационным принято считать ³H, который образуется при проведении термоядерных испытаний. Это когда часть ³H, изначально присутствующего в заряде, в процессе проведения взрыва конденсируясь, внедрялась в кристаллическую решетку застывающего расплава, причем как в виде отдельных атомов, так и в виде газовых микропузырьков [11].

Таким образом, ³Н в почве может содержаться в следующих формах (см. рисунок 1).

Наиболее распространёнными и изученными являются формы ³Н, содержащиеся в свободной воде [2, 12, 13]. Для их определения общепринятым считается метод дистилляции, высокая эффективность которого для почв СИП была оценена в работе, представленной в статье [14]. Известно немало работ, направленных на изучение связанного ³H [15, 16, 17]. Однако использованная в данных работах техника и методология эксперимента не совсем подходят для почв СИП, так как исследования проводились на почвах не подверженных ядерным испытаниям.

Содержание связанного ³Н в почвах территории СИП подтверждается ранее проведенными исследованиями [18]. Согласно этим исследованиям, в местах проведения наземных ядерных испытаний ³Н содержится в почве в значимых количествах, вероятно, его содержание в почве связано с видом проводимых испытаний, мощностью заряда и другими сопутствующими условиями. Это позволяет сделать вывод о необходимости дальнейших, более тщательных исследований поведения ³Н в местах проведения наземных и экскавационных взрывов.

Готовых методик по изучению форм нахождения ³Н и их распределения в грунтах в открытой печати нет. Поэтому возникла необходимость в разработке комплекса таких методик с учетом особенностей почв СИП.

Для определения содержания всех связанных форм ³H, в том числе и кристаллически связанного, применяется метод автоклавного разложения.

Однако в ходе проведения экспериментальных исследований возникли предположения, что данный метод, не всегда эффективен в случае применения к почвам СИП в виду специфической особенности формирования их радионуклидного загрязнения. Известно, что ³Н в почве и грунтах СИП мог образоваться вследствие наработки на легких элементах в результате реакции активации, имевшей место в момент проведения ядерных взрывов. Таким образом, в отличии от почв других территорий, в почвах СИП может присутствовать, так называемый, активационный ³Н.

В связи с этим, возникла необходимость провести оценку метода автоклавного разложения и его применимости для исследования всех связанных форм нахождения ³Н в местах проведения ядерных испытаний.



Рисунок 1. Формы нахождения ³Н в почве

Методология проведения исследования

В ходе разработки методических подходов для изучения связанных форм ³Н были поставлены несколько задач:

Задача 1. Оценка эффективности метода автоклавного разложения

Оценка проводилась методом «Введено-найдено». В ходе оценки эффективности процесса автоклавирования варьировались условия – менялась матричная структура и активность изотопного индикатора ³Н. В качестве матричной структуры использовались образцы с различным минералогическим составом: почва и цеолит, которые предварительно высушивали для удаления свободной воды (T=105 °C) и просеивали (d=1 мм). Для оценки влияния активности изотопного индикатора ³Н на эффективность процесса автоклавирования использовался изотопный индикатор с удельной активностью – 100, 1 000, 10 000 и 100 000 Бк/л.

Определение содержания ³Н во всех подготовленных образцах проводилось методом автоклавного разложения согласно [19]. Для этого навеска почвы обрабатывалась концентрированными кислотами – 2 мл HNO₃ и 4 мл HF, герметично упаковывалась в автоклав, далее устанавливалась в удерживающее устройство и помещалась в сушильный шкаф на 2,5 часа при температуре 160 °C.

После полного охлаждения автоклавы вскрывались, полученные образцы центрифугировались либо отфильтровывались. Для дальнейшего анализа использовалась только жидкая фаза или фильтрат с последующей нейтрализацией и дистилляцией. Твердая фаза или осадок не использовались.

На каждой из стадий эксперимента проводился холостой опыт. Все эксперименты проводились в 3-х повторностях. Схема эксперимента представлена на рисунке 2. Полученные результаты представлены в таблице 1.

Задача 2. Определение полноты извлечения связанного ³Н из почвы методом двустадийного автоклавного разложения

Основываясь на результатах, полученных в ходе решения Задачи 1, было сделано предположение, что полнота извлечения ³Н из почвы недостаточна. Для определения полноты извлечения связанного ³Н целесообразно было бы использовать стандартные образцы связанного ³Н. Но поскольку в мире не существует таких стандартных образцов, то было принято решение использовать почву с радиоактивно-загрязненных участков (РЗУ) СИП. Одним из главных параметров, указывающих на возможный нейтронноактивационный характер образования ³Н на территории СИП, является наличие корреляции между содержанием в почве ³Н и ¹⁵²Еи. Ввиду этого, основываясь на ранее полученных результатах [18, 20], в качестве образцов для исследования выбраны почвы района «Атомного» озера и площадки «Опытное поле», которые характеризуются наличием кристаллически связанного ³Н, образовавшегося вследствие нейтронно-активационных процессов в момент проведения ядерных испытаний.

Для определения полноты извлечения ³Н подготавливались 2 одинаковые навески почвы, одна из которых передавалась для определения содержания ³Н методом окислительного сжигания на приборе *Sample Oxidizer*. Вторая навеска подготавливалась методом автоклавного разложения с последующей нейтрализацией и дистилляцией. Для определения остаточного содержания ³Н к сухому осадку после метода дистилляции приливалась дистиллированная вода с последующей дистилляцией, а повторно образовавшийся сухой остаток снова автоклавировали.

Схематично ход эксперимента представлен на рисунке 3. Результаты данного эксперимента представлены в таблице 2.



Рисунок 2. Схема эксперимента автоклавного разложения с использованием различных матриц



Рисунок 3. Схема определения валового содержания ³Н в почве

МЕТОДИЧЕСКИЕ ПОДХОДЫ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ СВЯЗАННЫХ ФОРМ НАХОЖДЕНИЯ ТРИТИЯ В ПОЧВАХ РАДИОАКТИВНО-ЗАГРЯЗНЕННЫХ УЧАСТКОВ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА



Рисунок 4. Схема эксперимента по выявлению возможных потерь ³H на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения



Рисунок 5. Схема эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс автоклавирования с использованием изотопного индикатора

Задача 3. Выявление причины потерь ³Н на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения

Предполагалось, что основные причины потерь ³Н связаны с процессом подготовки проб. Это могли быть потери, связанные с негерметичностью установки, с процессом нейтрализации, низкой эффективностью используемых реагентов и другими факторами.

Для выявления возможных потерь ³Н при подготовке методом автоклавного разложения 2 одинаковые навески почвы РЗУ СИП параллельно подготавливались методом автоклавного разложения. Различалась лишь подготовка образцов после автоклавирования. Один из образцов нейтрализовался в автоклавах с последующей дистилляцией. А другой образец – с применением центрифугирования для определения содержания ³Н по отдельности в жидкой и в твердой фазе. Схема эксперимента представлена на рисунке 4. Полученные результаты представлены в таблице 3.

Для исключения потерь ³Н в процессе нейтрализации образцов после автоклавного разложения проведен эксперимент с использованием фоновой почвы с добавлением известной активности. Процесс схематично представлен на рисунке 5. Полученные результаты представлены в таблице 4.

Задача 4. Оптимизация метода автоклавного разложения путём подбора более эффективного реагента

С целью повышения эффективности метода автоклавного разложения проводились эксперименты с использованием различных реагентов и их соотношений. В ходе эксперимента навеска «активной» почвы СИП обрабатывалась не смесью кислот, а каждым из реагентов по отдельности – HNO₃, HF и H₂SO₄. При этом использовались разные объемы реагентов – 3, 5, 7 и 9 мл. Аналогичный эксперимент был проведен с использованием в качестве реагента дистиллированной воды. Схематично процесс представлен на рисунке 6, а полученные результаты представлены в таблице 5.

Однако, согласно [19] разложение почвенных образцов происходит эффективнее при использовании смеси HNO3 и HF. На основании этого было решено провести эксперимент по изучению влияния смеси различных реагентов, в качестве которых были выбраны концентрированные HNO3 и HF - рекомендованные как наиболее эффективные. Для проведения эксперимента использовались высушенные и просеянные образцы почвы, отобранные на площадке «Опытное поле». Далее из высушенной почвы отбирались 5 навесок массой по 2±0,001 г для подготовки методом автоклавного разложения. В каждую из навесок приливались последовательно HNO3 и HF в различных соотношениях согласно схеме, представленной на рисунке 7. Результаты эксперимента представлены в таблице 6.

Подготовка образцов для измерений удельной активности ³Н на всех стадиях исследований проводилась в соответствии с аттестованной методикой [21]. С полученного дистиллята отбирали аликвоту объемом 3 мл, добавляли сцинтиллятор в пропорции 1:4 и измеряли на жидкосцинтилляционном β-спектрометре *TriCarb 2900 TR*.

Расчет удельной активности ³Н производился на массу (кг) исходной пробы с учетом образовавшегося объема дистиллята.

Результаты

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 1, представлены в таблице 1.



Рисунок 6. Схема эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс извлечения ³Н из почвы методом автоклавного разложения



Рисунок 7. Схема эксперимента автоклавного разложения с использованием HNO3 и HF в различных соотношениях

Таблица 1.	Определение	полноты извлечения	³ Н методом	автоклавного	разложения
------------	-------------	--------------------	------------------------	--------------	------------

	_	Daaaa		Найдено						Холостая			
N⁰	Повтор-	введено			Почва			Цеолит		Без тве	ердого образ	зца	проба,
	HOOLD	УА, Бк/кг	АА, Бк	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	УА, Бк/кг	АА, Бк	% извл.	Бк/кг
1		95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
2	No1	970 ± 100	1,0 ± 0,1	370 ± 105	0,4 ± 0,1	38,1	345 ± 110	0,3 ± 0,1	35,6	520 ± 120	0,5 ± 0,1	53,6	< 50
3	IN≌ I	9100 ± 900	9,1 ± 0,9	3000 ± 300	$3,0 \pm 0,3$	33,0	2800 ± 270	$2,8 \pm 0,3$	30,8	3700 ± 375	$3,7 \pm 0,4$	40,7	< 50
4		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	39600 ±3960	39,6 ± 4,0	40,8	30800 ± 3080	30,8 ± 3,1	31,8	38300 ± 4000	$39,3 \pm 4,0$	39,5	< 50
5		95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
6	No2	970 ± 100	1,0 ± 0,1	440 ± 115	0,4 ± 0,1	45,4	260 ± 110	0,3 ± 0,1	26,8	265 ± 115	0,3 ± 0,1	27,3	< 50
7	IN≌∠	9100 ± 900	9,1 ± 0,9	4000 ± 400	4,1 ± 0,4	45,1	2200 ± 250	$2,2 \pm 0,3$	24,2	3800 ± 360	$3,8 \pm 0,4$	41,8	< 50
8		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	60000 ±5800	$60,0 \pm 5,8$	61,9	36500 ± 3800	$36,5 \pm 3,8$	37,6	46000 ± 4800	46,1 ± 4,8	47,5	< 50
9		95 ± 13	0,1 ± 0,01	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 95	< 0,1	< 10,0	< 50
10	Nie 2	970 ± 100	1,0 ± 0,1	340 ± 110	0,3 ± 0,1	35,1	280 ± 100	0,3 ± 0,1	28,9	320 ± 120	0,3 ± 0,1	33,0	< 50
11	CENT	9100 ± 900	9,1 ± 0,9	4300 ± 440	4,3 ± 0,4	47,3	3400 ± 330	$3,4 \pm 0,3$	37,4	4100 ± 450	4,1 ± 0,5	45,1	< 50
12		97000 ± 10000	97,0 ± 10,0	39600 ±4000	39,6 ± 4,0	40,8	30800 ±3100	30,8 ± 3,1	31,8	38300 ± 4000	$38,3 \pm 4,0$	39,5	< 50

No	Maa-a	De	Удельная активность ³ Н, Бк/кг			
N≌	место и точка отоора	повторность	измерение 1	измерение 2	измерение 3	измерение*
1		Nº1	79 000 ± 8 000	520 ± 60	< 50	
2	«A=0,000 = 1	Nº2	66 000 ± 6 600	480 ± 55	< 50	60.000 + 6.000
3	«Атомное» озеро, т. 1	Nº3	75 500 ± 7 800	260 ± 60	< 50	60000 ± 6000
4		холостая проба	< 50	< 50	< 50	1
5		Nº1	31 500 ± 3 000	90 ± 50	< 50	
6	— «Опытное поле», т. П-3	Nº2	31 000 ± 3 100	85 ± 50	< 50	16,000 + 1,500
7		Nº3	33 000 ± 3 400	< 50	< 50	10000 ± 1500
8		холостая проба	< 50	< 50	< 50	

Таблица 2. Определение валового содержания и полноты извлечения прочносвязанного ³Н из почвы методом двустадийного автоклавного разложения

* - результаты, полученные путем подготовки проб на приборе SAMPLE OXIDIZER

Основываясь на полученных данных установлено, что в процессе подготовки проб с использованием ранее предложенных методических подходов выход ³Н низкий и составляет всего порядка 27–48%. При этом низкая эффективность метода не зависит от матричной структуры твердого образца или от величины концентрации ³Н в нем. Таким образом, сделано предположение, что столь существенные потери могут быть связаны с другими процессами, происходящим на различных стадиях подготовки проб.

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 2, представлены в таблице 2.

В ходе проведенных работ установлено, что значительная часть ³Н выделяется из почвы на 1 стадии процесса автоклавирования. Остаточное содержание в сухом остатке меньше предела погрешности. Таким образом, выявлено, что для извлечения ³Н из почвы достаточно 1 стадии автоклавирования.

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 3, представлены в таблицах 3 и 4.

В результате экспериментальных работ установлено, что ³Н содержится в значимых количествах как в жидкой, так и в твердой фазе. Это указывает на то, что в результате автоклавирования твердая фаза разлагается недостаточно. Следовательно, значительные потери в процессе автоклавирования связаны с малой эффективностью используемых реагентов. Также полученные данные указывают на эффективность проведения процесса нейтрализации в автоклавах, т.е. о необходимости исключения стадии центрифугирования.

Полученные данные подтверждают, что потери ³Н не связаны с процессом нейтрализации.

Результаты, полученные в ходе выполнения работ по задаче 4, представлены в таблице 5.

Таблица 3. Выявление возможных потерь ³Н на различных стадиях при подготовке методом автоклавного разложения

No		Удельная активность ^з Н, Бк/кг			
N≌	повторность	измерение 1	измерение 2	измерение 3	
1	Nº1	47 000 ± 4 700	29 000 ± 2 900	22 000 ± 2 200	
2	Nº2	44 000 ± 4 400	32 000 ± 3 200	17 000 ± 1 700	
3	Nº3	46 000 ± 4 600	15 000 ± 1 500	17 000 ± 1 700	
4	Холостая проба	< 50	< 50	< 50	

Таблица 4. Результаты эксперимента по изучению влияния различных реагентов и их объемов на процесс автоклавирования с использованием изотопного индикатора

No	Объем	Абсолютная активность ³ Н, Бк			
IN≌	реагента, мл	H₂O	HNO₃	HF	
1	3,0	50 ± 5	65 ± 7	50 ± 5	
2	5,0	70 ± 7	65 ± 7	58 ± 6	
3	7,0	70 ± 7	67 ± 7	60 ± 6	
4	9,0	80 ± 8	73 ± 7	60 ± 6	

В результате экспериментальных работ с вариациями реагентов было выявлено, что вид реагента оказывает существенное влияние на процесс автоклавирования. Наибольшая эффективность извлечения ³Н отмечается при использовании НF, что в 1,5 раза эффективнее реагентов, используемых согласно рабочей инструкции подготовки проб для элементного анализа методом автоклавного разложения [19].

Таблица 5. Влияние различных реагентов и их объемов на процесс извлечения ³Н из почвы методом автоклавного разложения

No	Объем	Удельная активность ^з Н, Бк/кг					
INº	реагента, мл	H₂O	H₂SO₄	HNO₃	HF	холостая проба	
1	3,0	1 300 ± 120	-*	9 200 ± 900	34 200 ± 3 400	< 50	
2	5,0	1 100 ± 120	7 500 ± 750	11 000 ± 1 100	50 100 ± 5 000	< 50	
3	7,0	1 300 ± 120	7 000 ± 700	12 500 ± 1 250	55 000 ± 5 500	< 50	
4	9,0	2 700 ± 270	8 500 ± 850	12 000 ± 1 200	55 500 ± 5 500	< 50	

* - измерение не проводилось по причине образования темного дистиллята

Nº	Место и точка	Соотно реагент	ошение гов, мл	Удельная активность ^з Н,
	отоора	HNO ₃	HF	Бк/кг
1		1,0	9,0	54 000 ± 5 000
2		3,0	7,0	56 000 ± 5 000
3	«Опытное поле», т П-3	5,0	5,0	52 000 ± 5 000
4	1.110	7,0	3,0	41 000 ± 4 000
5		9,0	1,0	33 000 ± 3 000
6	Холостая проба	-	9,0	< 50

Таблица 6. Оценка влияния смеси HNO3 и HF в различных соотношениях

Из полученных результатов следует, что использование смеси HNO₃ и HF в соотношении 3:7 более эффективно, что и рекомендовано использовать для оптимизации метода.

Заключение

В результате проведенных экспериментальных работ проведена оценка эффективности метода автоклавного разложения, используемого для определения содержания связанных форм трития. Выявлено, что значительные потери связаны с неполным вскрытием матрицы и особенностями проведения анализа (с применением и без применения стадии центрифугирования). Экспериментальным путём установлено, что для повышения эффективности и оптимизации метода необходимо в качестве реагентов использовать смесь концентрированных плавиковой и азотной кислот в соотношении 7 и 3 мл, соответственно, а также исключить стадию центрифугирования. Также определено, что сама матричная структура и величина концентрации трития в ней не оказывает какого-либо влияния на процесс автоклавного разложения.

В результате проведенной оценки эффективности и применимости метода автоклавного разложения для определения связанных форм нахождения трития в почвах Семипалатинского испытательного полигона можно отметить, что метод применим для определения как суммарного содержания связанных форм трития, так и для определения каждой из форм (органически связанного и кристаллически связанного трития) по отдельности.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что ранее полученные данные об уровнях концентрации связанного трития в почвах Семипалатинского испытательного полигона могут быть занижены. Таким образом, при проведении дальнейших работ по определению форм нахождения трития в почвах следует использовать оптимизированный метод автоклавного разложения.

Экспериментальные исследования, представленные в данной статье, выполнены в рамках РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018– 2020 гг., этап 03.05. «Механизмы перераспределения трития в природных экосистемах, подверженных воздействию радиационно-опасных объектов и предприятий атомной отрасли».

Литература

- 1. Кинетика изотопно-водородного обмена в бентонито-песчаной смеси / А.В. Пушкарев, В.В. Долин, В.В. Приймаченко, В.Н. Бобков, Р.А. Пушкарева // Институт геохимии окружающей среды: сб. тр. Киев, 2007. Вып.15. С. 27–36.
- 2. Tritium redistribution between water and clay minerals / A. Lopez-Galindo, Hach-Alip, Fenoll, A.V. Pushkarev // Applied Clay Science. 2008. № 39. P. 151–159.
- Шишелова Т.И., Созинова Т.В., Коновалова А.Н. Практикум по спектроскопии. Вода в минералах. Учеб. пособие. М.: Академия Естествознания, 2010. – ISBN 978-5-91327-093-1.
- Ядерно-магнитный каротаж. Газовые гидраты. Контроль и управление разработкой пластов / Д. Аллен, С. Крэри, Б. Фридман // Нефтегазовое обозрение. - Хьюстон: Изд. Schlumberger, 2001. – Вып. 2. – С. 6–9.
- Белицина Г.Д., Васильевская В.Д., Гришина Л.А. Почвоведение. Почва и почвообразование. –М.: Высш. Шк., 1988. С. 85–252.
- 6. Бетехтин А.Г. Минералогия. М: Государственное издательство геологической литературы, 1950. С. 76–78.
- Researching of tritium speciation in soils of "Balapan" site / Z.B. Serzhanova, A.K. Aidarkhanova, S.N. Lukashenko, O.N. Lyakhova, L.V. Timonova, A.M. Raimkanova // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – № 192. – P. 621–627.
- Марчик Т.П. Почвоведение с основами растениеводства / Учреждение образования Гродненский государственный университет им. Я. Купалы (Гродно). – Гродно :ГрГУ, 2006. – 249 С.
- 9. NCRP. Tritium in the environment. National Council on Radiation Protection and Measurement, Bethesda, Maryland. 1979.
- 10. Organically Bound Tritium / S. Diabate, S. Strack // Health Physics 65. 1993. P. 698-712.
- 11. Тритий как индикатор мест проведения ядерных испытаний // О.Н. Ляхова, С.Н. Лукашенко, Н.В. Ларионова, С.Б. Субботин // Вестник НЯЦ РК. 2011. Вып. 3. С. 125–129.
- Baglan N., Kim S.B., Cossonnet C., Croudace I.V., Fournier M., Galeriu D., Warwick P.E., Momoshima N., Ansoborlo E. Organically bound tritium behaviour and analysis: outcomes of the seminar held in Balaruc-les-Bains in May 2012. Radioprotection – EDP Sciences, 2013.
- 13. Ровинский Ф.Я., Иохельсон С.Б., Юшкан Е.И. Методы анализа загрязнения окружающей среды. Токсические металлы и радионуклиды. Москва : Атомиздат, 1978. 264 с.
- Оптимизация методов исследования тритиевого загрязнения почв с учетом особенностей Семипалатинского испытательного полигона / З.Б. Сержанова, А.К. Айдарханова, О.Н. Ляхова, Р.А. Койшыбаев // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – Вып. 4. – С. 49–53.

- Organically bound tritium activity concentrations in surface soil at the Chalk River Laboratories, Canada / S.B. Kim, M. Bredlaw, H. Rouselle, F. Farrow, J. Carr, V.Y. Korolevych, M. Stuart // Journal of Environmental Radioactivity. – 2019. – Vol. 208–209, – 105999.
- 16. A method for the determination of organically bound tritium in marine biota based on an improved tubular-combustion system / Feng Lin, Wen Yu, Junpeng Guo, Hui Liao, Yong Wang // Journal of Environmental Radioactivity. – 2020. – № 211, – 106084.
- Levels of tritium in soils and vegetation near Canadian nuclear facilities releasing tritium to the atmosphere: implications for environmental models / P.A. Thompson, N.-O.A. Kwamena, M.Wilk, I.D. Clark // Journal of Environmental Radioactivity. – 2015. - № 140. – P. 105-113.
- 18. Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Лукашенко С.Н., Айдарханов А.О. Исследование содержания трития в почве в местах проведения ядерных испытаний на территории Семипалатинского испытательного полигона // Радиационная биология. Радиоэкология. 2015. Т. 55. № 6. С. 667–672.
- 19. Рабочая инструкция 03-02-03 (А). Подготовка проб для элементного анализа методом автоклавного разложения. Курчатов: ИРБЭ НЯЦ РК, 2011. С.12.
- 20. Раимканова А.М., Айдарханова А.К., Ляхова О.Н., Сержанова З.Б. Оценка влияния физико-химических факторов на процессы выщелачивания радионуклидов из грунта // Радиохимия. 2019. Т. 61. № 5. С. 439–445.
- Международный стандарт ISO 9698:2010 (Е). Качество воды определение активности трития, соответствующей данной концентрации жидкостной метод сцинтилляционного счета. Введ.1989-12-01. Москва: ВЦП НТЛИД, 1990. 17 с.

СЕМЕЙ СЫНАҚ ПОЛИГОНЫНЫҢ РАДИОАКТИВТІ-ЛАСТАНҒАН ТЕЛІМДЕРІНІҢ ТОПЫРАҚТАРЫНДАҒЫ ТРИТИЙДІ АНЫҚТАУДЫҢ БАЙЛАНЫСҚАН ФОРМАЛАРЫН ЗЕРТТЕУГЕ АРНАЛҒАН ӘДІСТЕМЕЛІК ТӘСІЛДЕР

З.Б. Сержанова, А.К. Айдарханова, О.Н. Ляхова, Л.В. Тимонова, А.М. Раимканова

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада топырақтағы ³Н анықтау формаларын зерттеуге арналған әдістемелік тәсілдер ұсынылған. ³Н байланысқан формаларын анықтау үшін қолданылатын автоклавты ыдырау әдісінің тиімділігі мен сапасына бағалау жүргізілген. ³Н бөлу процесіне матрицалық құрылымның әсерін бағалау үшін үлгілер ретінде топырақ пен цеолит қолданылған. Тәжірибе барысында ³Н құрамының әсері мен толық бөлінуін бағалау үшін 100-ден 100 000 Бк/л дейінгі түрлі белсенділіктегі изотопты индикатор қолданылған. Барлық тәжірибелер бірнеше қайталанып жүргізілген. Тәжірибенің әрбір кезеңінде оның «тазалығын» бағалау үшін салтаң тәжірибе жүргізілген.

Аталған әдістің тиімділігі шамамен 27–48% құрайтыны көрсетілді. Айтарлықтай шығынның матрицаның толық ашылмауымен және талдама жүргізудің ерекшеліктерімен байланысты екені белгіленді. Матрицалық құрылым мен ³Н құрамы топырақтан ³Н байланысқан формаларын бөлудің тиімділігіне әсер етпейтіні анықталды. Авторлар әдістің тиімділігін жоғарылату үшін реагенттер ара қатынасын өзгерту және центрифугалау кезендерін болдырмау сияқты бірқатар әдістерді ұсынған.

METHODOLOGICAL APPROACHES TO RESEARCH INTO TRITIUM BOUND SPECIATION IN SOILS OF RADIOACTIVELY CONTAMINATED AREAS AT SEMIPALATINSK TEST SITE

Z.B. Serzhanova, A.K. Aidarkhanova, O.N. Lyakhova, L.V. Timonova, A.M. Raimkanova

Branch «Institute of Radiation Safety and Ecology» RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article provides methodological approaches to research into 3 H speciation in soil. The quality and efficiency of the autoclave decomposition technique was assessed, which was used for separating bound 3 H. Soil and zeolite were used as samples for assessing the impact of the matrix structure on 3 H extraction process. In the course of the experiment, a tracer of the different activity – 100 to 100,000 Bq/l was used for assessing completeness of extraction and the impact of 3 H content. Each experiment were conducted in several replications. At each experimental stage, a blank test was conducted to assess its 'integrity'.

It was shown that the efficiency of this technique is about 27–48%. It was found that significant losses are related to an incompletely open matrix and features of the analysis carried out. It was revealed that the matrix structure and the content of ³H do not affect the extraction efficiency of ³H bound forms from soil. Authors suggested a number of approaches to improve the technique efficiency, such as measuring the ratio of reagents and omitting the centrifuging stage.

УДК 621.039.74: 621.039.7.13

ОЦЕНКА ЦЕЛОСТНОСТИ ЗАЩИТНЫХ БАРЬЕРОВ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНИЛИЩА ОЯТ РЕАКТОРА БН-350

Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Айдарханов А.О., Абдигамитов Б.А.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

Одним из видов обращения с ОЯТ является долговременное контейнерное хранение отработавшего ядерного топлива. С целью осуществления комплексной радиационной оценки и возможности выполнения долгосрочных прогнозных оценок радиационной ситуации на территории хранения ОЯТ необходимо осуществлять контроль за эманацией радиоактивных газов в атмосферу.

Газообразные отходы являются одним из видов радиоактивных отходов, образующихся при работе объектов атомной энергетики и промышленности. Превышение их содержания в воздухе может свидетельствовать о радиоактивных выбросах атомных электростанций или медицинских учреждений, ядерных авариях и взрывах, а также о радиационных авариях, к которым можно отнести разгерметизацию контейнеров хранения ОЯТ. К газообразным радиоактивным отходам относятся газы, содержащие в своем составе радионуклиды: ⁴¹Ar, ¹³⁵Xe, ⁸⁵Kr, ¹³¹I, ³H, ¹⁴C и др., которые зачастую могут образовываться и поступать в воздушную среду в количествах, превышающих уровни, установленные нормами радиационной безопасности [1].

В данной статье представлены результаты исследований объемной активности радиоактивных газов в воздухе на территории долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350.

Введение

Отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) – это топливо, отработавшее цикл в реакторе, которое содержит в себе невыгоревший уран и трансурановые элементы. В связи с этим, в тепловыделяющих сборках продолжают происходить ядерные превращения, которые сопровождаются повышенным радиоактивным излучением, а также постоянным (слабо снижающимся с течением времени) выделением тепла.

Методы обращения с отработанным ядерным топливом могут быть различны в стратегических подходах и по набору используемых технологий. Однако все они объединяются общими принципами, связанными с вопросами безопасности.

На современном этапе, в соответствии с тенденциями развития ядерных и радиационных технологий, при организации долговременного хранения ОЯТ используются в основном технологии контейнерного хранения [2].

Общий принцип «сухого» контейнерного хранения ОЯТ заключается в том, что отработавшее топливо хранится в герметичных металлических корзинах, заполненных инертным газом, обычно гелием, а сами корзины располагаются в корпусе защитного контейнера. Прочная конструкция корпуса контейнера служит в качестве радиационной защиты, а также предотвращает повреждение металлической корзины. Контейнер может быть, как бетонный, так и металлический. Теплоотвод осуществляется за счет естественной конвекции окружающего воздуха [3].

Хранилище ОЯТ, согласно стандартам МАГАТЭ, является ядерной установкой. Соответственно, требования к безопасности почти такие же, как и к безопасности АЭС [3].

Главное условие долговременного хранения ОЯТ – соблюдение критериев ядерной безопасности и радиационной защиты согласно требованиям национальных нормативно-законодательных документов по защите персонала, населения и окружающей среды на протяжении всего проектного времени функционирования хранилища в режимах нормальной эксплуатации и нарушений нормальной эксплуатации, включая проектные аварии [2].

Цель работы заключалась в проведении оценки целостности защитных барьеров долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350.

Методология проведения работ

Так как топливом для работы реактора БН-350 служила двуокись урана (UO₂), то основными радиоактивными газами для исследования в воздухе являлись короткоживущие благородные газы: продукт активации аргон (⁴¹Ar) и продукты деления урана (^{85m}Kr, ⁸⁷Kr, ⁸⁸Kr, ¹³⁵Xe). Дополнительно, для контроля радиоактивности воздушной среды, проведены исследования по содержанию тритированных газообразных продуктов, которые могут быть представлены в воздухе в виде окисленных (НТО) и газообразных (НТ) соединений трития.

Аппаратурно-методическое обеспечение

Для достижения поставленной цели использовалось соответствующее аппаратурно-методическое обеспечение. Пробы воздуха отбирались криогенным устройством «Пурга» (Казахстан) (рисунок 1) и коллектором трития «OS1700» (ORTEC, США) (рисунок 2). Анализ образцов, полученных при помощи установки «Пурга», проводился на гамма-спектрометрической установке фирмы Canberra на базе многоканального амплитудного анализатора «InSpector 2000» с коаксиальным германиевым детектором «GC-1518». Пробы воздуха, отобранные коллектором трития, анализировались жидкосцинтилляцион-



Рисунок 1. Пробоотборное устройство «Пурга»



Рисунок 2. Пробоотборное устройство коллектор трития «OS1700»

ным методом на бета-спектрометре «SL-300» (Hidex, Финляндия).

Криогенное устройство «Пурга» предназначено для отбора проб газоаэрозольных форм различных радиоактивных и нерадиоактивных примесных фракций, содержащихся в воздухе. Устройство позволяет в процессе пробоотбора получать как совокупную пробу, содержащихся в воздухе газоаэрозольных примесей, так и дифференцированную пробу. В последнем случае, часть компонент примесей в аэрозольной и относительно легкосорбируемой газовой формах задерживается на различных композиционных элементах сорбционно-фильтрующей насадки. При этом благородные и другие трудносорбируемые газы равномерно распределяются по всему объему сжиженного воздуха. Принцип действия установки основан на способности воздуха сжижаться в том же составе основных компонентов на поверхности, охлаждаемой ниже температуры кипения анализируемого воздуха, имеющего состав: азот (N₂) - 78%, кислород (O₂) – 21% ($T_{\kappa u \pi}$ = -193 °C), но не ниже температуры кристаллизации кислорода. При испарении сжиженного воздуха более высокую скорость испарения имеет N2 и меньшую – O2. Скорость испарения изотопов криптона (Kr) незначительна по сравнению со скоростью испарения кислорода, а скорость испарения ксенона (Хе) еще ниже. Регулярный долив в испаряющуюся пробу жидкого азота поддерживает испарение криптона (не говоря уже о ксеноне) на минимальном уровне, что подтверждается многочисленными исследованиями, проводившимися на открытых пусках реактора [4].

Пробоотборное устройство коллектор трития «OS1700» предназначено для выделения из воздуха тритированных газообразных продуктов, которые могут содержаться в нем в виде окисленных (НТО) и газообразных (HT) соединений трития [5]. Согласно технологической схеме, воздушный поток, поступая в коллектор трития, проходит последовательно через 2 каскада, каждый из которых состоит из 3-х поглотительных емкостей, заполненных жидким поглотителем, в данном случае – дистиллированной водой. В первом каскаде емкостей осуществляется последовательное очищение воздуха от тритированных паров воды, в связи с чем, происходит выделение из воздуха окисленных соединений трития - НТО. Далее, очищенный поток воздуха проходит через палладиевую спираль, нагретую до 450 °C, где происходит окисление всех газообразных форм трития – HT, и их последующее поглощение водой во втором каскаде поглотительных емкостей.

Выбор оборудования для отбора проб воздуха основан на результатах экспериментальных исследований, проведенных во время пуска реактора ИВГ.1М при мощности 6 МВт. В ходе проведения экспериментов обеспечивалась подача воздуха в пробоотборное оборудование из трубопровода вентиляционной системы реактора, расположенной в подреакторном помещении. Топливом для реактора ИВГ.1М служит обогащенный уран, поэтому при проведении экспериментальных работ предполагалось определение продуктов его деления.



Рисунок 3. Гамма-спектр пробы воздуха

На рисунке 3 представлен гамма-спектр, показывающий набор газообразных продуктов, зафиксированных в ходе пусковых работ на исследовательском реакторе.

В результате проведенных работ на примере реактора ИВГ.1М в ходе пусковых работ зафиксированы короткоживущие благородные радиоактивные газы: ⁴¹Ar (до 9 300 Бк/м³), ^{85m}Kr (360 Бк/м³), ⁸⁷Kr (800 Бк/м³), ⁸⁸Kr (1320 Бк/м³), ¹³⁵Xe (120 Бк/м³). Происхождение ⁴¹Ar объясняется наличием в воздухе изотопов природного ⁴⁰Ar, который вследствие нейтронной активации преобразуется в ⁴¹Ar. Радиоактивные газы ^{85m}Kr, ⁸⁷Kr, ⁸⁸Kr, ¹³⁵Xе являются продуктами деления ²³⁸U, используемого в качестве реакторного топлива. ⁸⁸Rb образуется в результате распада⁸⁸Кг. Первоначально образующейся ⁸⁸Кг, проникающий через стенки реактора в подреакторное помещение, распадается с образованием ⁸⁸Rb. В определенный момент времени после начала пуска содержание ⁸⁸Rb начинает увеличиваться до тех пор, пока происходит накопление ⁸⁸Kr. Его содержание остается постоянным еще некоторое время после завершения пуска, пока ⁸⁸Кг полностью не распадется. ¹³⁸Сs является продуктом распада ¹³⁸Хе. Радионуклиды ²¹⁴Рb и ²¹⁴Вi являются продуктами распада естественного радионуклида ²²²Rn, содержащегося в воздухе рабочей зоны. Радионуклид ⁴⁰К входит в состав измерительной стеклянной колбы и в состав стен зданий объекта КИР «Байкал-1». Так же в ходе исследований зафиксированы соединения трития (HTO – 20 Бк/м³ и HT – 3 Бк/м³). Источником образования трития могла являться нейтронная активация ряда легких элементов, присутствующих в компонентах топлива и других реакторных материалах.

Полученные результаты экспериментальных исследований дают основание считать, что выбранное и подготовленное аппаратурно-методическое обеспечение может успешно использоваться для оценки эманации радиоактивных газов в месте хранения ОЯТ реактора БН-350.

Экспериментальные работы на территории долговременного хранения ОЯТ реактора БН-350

Для контроля возможного выхода продуктов деления с контейнеров в окружающую среду проведены исследования радиоактивного загрязнения воздуха на площадке ДКХОЯТ БН-350. Исследовательские участки располагались между контейнерами, содержащими ОЯТ.

На каждом участке проводился отбор проб воздуха с последующим проведением лабораторных анализов на определение содержания радиоактивных газообразных продуктов. Выбор участков отбора проб проведен с учетом расположения контейнеров и расстояния между ними для возможности охвата всей исследуемой территории. Всего выбрано и исследовано 15 участков. Из них 1 участок являлся мониторинговым, на котором отбор проб воздуха производился в ходе пусковых работ реактора ИВГ.1М с целью оценки возможного вклада выбросов от реактора в воздух. На остальных 14 участках отбор проб производился вне пуска реактора. В связи с конструкцией пробоотборных устройств отбор проб воздуха производился на отметке 0,5 м от бетонного основания площадки.

Все пробы воздуха передавались на качественный и количественный анализ на содержание основных радиоактивных газов. Во избежание распада короткоживущих радиоактивных элементов пробы воздуха, отобранные устройством «Пурга», анализировались γ-спектрометрическим методом анализа в течение 30 мин. после завершения отбора. Проведение γ-спектрометрического измерения осуществлялось на объекте КИР «Байкал-1». Время экспозиции для всех образцов составляло 1 ч.

Результаты экспериментальных работ

Перед проведением экспериментальных работ на территории хранения ОЯТ, для оценки вклада фона в помещении расположения γ -спектрометра проведены фоновые измерения воздуха во время пуска реактора и в межпусковой период. Для этого был произведен отбор проб воздуха устройством *«Пурга»* и проведены измерения в стеклянной колбе с сжиженным воздухом на γ -спектрометре.

По результатам γ -спектрометрического анализа видно, что в спектре наблюдаются гамма-линии, принадлежащим продукту распада ²²²Rn, а также линия, принадлежащая изотопу ⁴⁰К (рисунок 4).

В ходе изучения фоновых образцов, отобранных в пусковой период, кроме указанных радионуклидов, также зафиксировано присутствие следов ⁴¹Ar в воздухе (рисунок 5), который образуется в воздухе рабочей зоны в ходе пуска реактора.



Рисунок 4. Гамма-спектр измерения фона (межпусковой период)





По результатам измеренных фоновых проб с сжиженным воздухом рассчитаны и представлены в таблице средние значения МДА для радиоактивных газов и продуктов распада²²²Rn.

Радионуклид	Энергия ү-кванта, кэВ	Квантовый выход, %	МДА, Бк/м ³
⁴¹ Ar	1293,6	99,0	0,015
^{85m} Kr	151,2	75,4	0,005
⁸⁷ Kr	402,6	49,6	0,390
⁸⁸ Kr	2392,1	34,6	0,580
¹³⁵ Xe	249,8	90,0	0,024
⁸⁸ Rb	1836,0	21,4	0,140
¹³⁸ Cs	1435	76,0	0,032
²¹⁴ Bi	609,3	46,3	0,014
²¹⁴ Pb	351,0	37,2	0,018

Таблица. Результаты расчета МДА для радиоактивных газов и продуктов распада ²²²Rn

На территории хранения ОЯТ для исследований радиоактивных газов в воздухе как в ходе пуска, так и вне пуска реактора ИВГ.1М всего отобрано и проанализировано 39 проб воздуха. Из них отобрано криогенным устройством «Пурга» – 20 проб, коллектором трития «OS1700» – 19 проб.

На рисунках 6 и 7 представлен вид гамма-спектров, полученных при измерении проб воздуха, отобранных в пусковой и межпусковой период.



Рисунок 6. Гамма-спектр пробы воздуха (межпусковой период)



Рисунок 7. Гамма-спектр пробы воздуха (пусковой период)

В результате исследований, проведенных вблизи контейнеров, содержащих ОЯТ, численных значений объемной активности радиоактивных газов и соединений трития в воздушной среде не зафиксировано.

Выводы

В результате проведенных работ выявлено, что объемная активность радионуклидов в воздушной среде составила менее предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Это говорит о том, что радиационное состояние вокруг контейнеров на отметке 0,5 м от бетонного основания площадки стабильное. Таким образом, на данный момент, можно сказать об отсутствии формирования радиоактивного загрязнения на исследуемой территории площадки ДКХОЯТ БН-350 и герметичности контейнеров за весь период эксплуатации.

газдардың көлемдік белсенділігінің нәтижелері келтірілген.

Работы по оценке целостности защитных барьеров долговременного хранилища ОЯТ реактора БН-350 выполнены в рамках РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг., этап 04.03. «Разработка методики оценки эманации газов на площадке хранения ОЯТ реактора БН-350»

Литература

- 1. Брылева В.А., Кузьмина Н.Д., Нарейко Л.М. Радиоактивные отходы АЭС //Информационный бюллетень. Серия: Атомная энергетика. – 2010. – № 10–11. – С. 5. – Режим доступа: http://sosny.bas-net.by/wp-content/uploads/2012/09/bul_2010_ 10_11.pdf.
- 2. Брылева В.А., Войтецкая Е.Ф., Нарейко Л.М. Хранение отработавшего ядерного топлива на АЭС // Информационный бюллетень. Серия: Атомная энергетика. 2012. № 7–8. 8 с. Режим доступа: http://sosny.bas-net.by/wp-content/ uploads/2012/12/bul_2012_7-8.pdf.
- Teller M. О современном методе хранения отработавшего ядерного топлива. 2017. Режим доступа: https://habr.com/ post/400511/.
- Сергеев В.Ю., Ляхова О.Н. Применение криогенного пробоотборника «ПУРГА-К» для определения радиоактивных выбросов в атмосферу // Вестник НЯЦ РК. – 2004. Вып.1. – С. 69–74.
- Тимонова Л.В., Ляхова О.Н., Турченко Д.В., Лукашенко С.Н. Оптимизация методики определения газообразного трития в воздушной среде // Семипалатинский испытательный полигон. Радиационное наследие и перспективы: тез. докл. VI Междунар. науч.-практ. конф., 24–26 сентября, 2014. – Курчатов. – С. 94–95. ISBN 978-601-7112-85-1.

ЖН-350 РЕАКТОРЫНЫҢ ЯОҚ ҰЗАҚ МЕРЗІМДЕ САҚТАУ ҚОЙМАСЫНЫҢ ҚОРҒАНЫШ ТОСҚАУЫЛДАРЫНЫҢ БҮТІНДІГІН БАҒАЛАУ

Л.В. Тимонова, О.Н. Ляхова, А.О. Айдарханов, Б.А. Абдигамитов

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

ЯОҚ қолданудың бір түрі, пайдаланылған ядролық отынды ұзақ мерзімде контейнерде сақтау болып табылады. Кешенді радиациялық іске асыру мақсатында және ЯОҚ сақтау аумағындағы радиациялық ахуалға ұзақмерзімді болжамды бағалау жүргізу үшін радиоактивті газдардың атмосфераға эманациялануын бақылау қажет. Газ тәріздес қалдықтар, бұл атом энергетикасы мен өнеркәсіптің жұмысы нәтижесінде пайда болатын радиоактивті қалдықтардың бір түрі. Ауада олардың құрамынан асып кетуі, атом электр станцияларынан немесе медициналық мекемелерден, ядролық апаттар мен жарылыстардан, сонымен қатар ЯОҚ сақтайтын контейнерлердің герметизацияларының жойылуына қатысты радиациялық апаттардан кейін шығатын радиоактивті шығарындылардың орын алуын көрсетуі мүмкін. Газ тәрізді радиоактивті қалдықтарға құрамында келесі радионуклидтері бар газдар жатады: ⁴¹Ar, ¹³⁵Xe, ⁸⁵Kr, ¹³¹I, ³H, ¹⁴C және басқалары, олар көп жағдайда радиациялық қауіпсіздік нормаларымен белгіленген деңгейден асатын мөлшерде ауаға түсіп, түзіле алады. Бұл мақалада, ЖН-350 реакторының ЯОҚ ұзақ мерзімде сақтау аумағындағы ауада орын алған радиоактивті

ASSESSMNET OF INTEGRITY OF PROTECTIVE BARRIERS OF LONG-TERM STORAGE FACILITY OF BN -350 REACTOR FACILITY

L.V. Timonova, O.N. Lyakhova, A.O. Aidarkhanov, B.A. Abdigamitov

Branch «Institute of Radiation Safety and Ecology» RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

One of the ways of long-term handling spent nuclear fuel is storage of spent nuclear fuel in containers. For the purpose of complex radiological assessment and to make long-term prediction estimates of radiological situation possible at the territory of spent nuclear fuel storage facility the control over emanation of radioactive gases into atmosphere should be provided.

Gaseous wastes are one a kind of radioactive wastes resulting from operation of nuclear energy and industry facilities. And increase in their concentration in the air indicate radioactive wastes from nuclear power plants or medical institutions, nuclear accidents and explosions and also of radiation accidents, that can include seal failure of spent nuclear fuel storage containers. Gaseous radioactive wastes include gases, containing ⁴¹Ar, ¹³⁵Xe, ⁸⁵Kr, ¹³¹I, ³H, ¹⁴C and other radionuclides, that can often be formed and enter air environment in amounts, exceeding the levels determined by the norms of radiation safety.

This paper provides results of researches of volumetric activity of gases in the air at the territory of spent nuclear fuel long-term storage facility of BN-350 reactor facility.

ОСОБЕННОСТИ РАСЧЕТА МОЩНОСТИ ЭЛЕМЕНТОВ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ НА ИГР

Жанболатов О.М., Иркимбеков Р.А.

Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье рассмотрены различные методики расчета мощности элементов экспериментального устройства. Проведен сравнительный анализ положительных и отрицательных сторон каждой методики, представлены способы расчета и границы применимости. Разработка методик расчета энергетических параметров установки является важной задачей для развития экспериментальной физики реакторов.

Введение

Реактор ИГР [1] является исследовательским реактором с уникальными нейтронно-физическими характеристиками. Одним из направлений научных изысканий является моделирование различных аварийных ситуаций, способных произойти на реакторах и оценка возникающих повреждений. Для решения подобных вопросов необходимо проведение высокоточных экспериментальных исследований.

Одним из главных критериев эффективности эксперимента является знание динамики распределения энерговыделения в активной зоне самого реактора, в топливе и конструкционных материалах экспериментального устройства. Данная характеристика важна для определения допустимых границ, при которых обеспечивается безопасность хода эксперимента. Проблема с распределением мощности становится особенно актуальной в случае отсутствия или ограничения охлаждения различных испытываемых элементов.

Данная работа ставит целью сравнения существующих расчетных методик для получения достоверных значений диаграммы мощности топлива и конструкционных материалов. На примере экспериментального устройства с конвертором нейтронов ИГР [2–5], исследовано энерговыделение в ампуле, основным предназначением которой является защита корпуса реактора в случае аварийных ситуаций. Это является необходимым как для обеспечения безопасности проведения эксперимента, так и для достижения целей испытания.

Экспериментальное устройство

На рисунке 1 представлены геометрия и размеры элементов экспериментального устройства. Поглотитель нейтронов конвертора выполнен из природного кадмия. Низкая температура плавления кадмия потребовала введения тракта его охлаждения. Тракты теплоносителя тепловыделяющих сборок раздельные с идентичной геометрией по газовому потоку.

Твэлы обеих сборок набираются из топливных таблеток типа БН-350, высота топливного столба в обоих твэлах одинакова и равна 300 мм. Топливные таблетки из диоксида урана расположены в оболочке, которая представляет собой стальную трубку с размерами 6,9×0,4 мм. С торцов твэлы закрываются заглушками. Центр верхнего твэла находится на высоте +800 мм относительно центра активной зоны, середина нижнего твэла совпадает с центром активной зоны.



1 – топливо 17%; 2 – оболочка «быстрого» твэла; 3 – рубашка охлаждения «быстрого» твэла; 4 – тепловой экран; 5 – кадмиевый поглотитель; 6 – корпус теплового твэла; 7 – топливо 0,27%; 8 – оболочка теплового твэла; 9 – рубашка охлаждения теплового твэла; 10 – корпус теплового твэла, 11 – фиксатор

Рисунок 1. Эскиз конструкции испытательной секции

При этом у каждого твэла есть свои отличительные конструктивные особенности. Верхний твэл содержит топливные таблетки из диоксида урана массой около 80 г с обогащением 17 % по ²³⁵U, конвертер тепловых нейтронов в быстрые (кадмиевая трубка). Нижний твэл не содержит кадмиевого поглотителя и набирается из топливных таблеток из диоксида урана массой около 86 г с обогащением 0,27 % по ²³⁵U.

В обоих твэлах между топливными таблетками в нижней, средней и верхней частях твэлов устанавливаются активационные детекторы из никелевой фольги в виде диска диаметром 5,9 мм, толщиной 0,1 мм.

Испытательная секция помещается в защитный корпус с ловушкой расплава. Ловушка представляет собой стальной стакан с наружным диаметром 158 мм и высотой 250 мм. К торцу стакана приварен стальной корпус. Корпус представляет собой обечайку с наружным диаметром 167 мм и толщиной 1,5 мм. Ловушка устанавливается внутрь защитной ампулы и предназначена для защиты стенок внутреннего корпуса ампулы от перегрева во время эксперимента.

Защитная ампула представляет собой сварную конструкцию из стали, состоящую из цилиндрической обечайки, фланца и эллиптического днища. Основная задача ампулы – защита стенок ампулы реактора HA228 от высокотемпературного воздействия частей испытательного устройства.

РАСЧЕТНАЯ МОДЕЛЬ И ПРОГРАММЫ

Управление реактором при проведении эксперимента основано на знании зависимости мощности в исследуемом устройстве и в реакторе. Для определения энергетических параметров топлива и конструкционных материалов экспериментального устройства с учетом нагрева графитовой кладки реактора ИГР, был выполнен ряд нейтронно-физических расчетов с помощью программы *MCNP5* [6] с библиотеками ядерных констант *ENDF/B-VII*.



 испытательная секция, 2 – защитный корпус с ловушкой расплава, 3 – защитная ампула

Рисунок 2. Объединенная модель ИГР и экспериментального устройства для нейтронно-физического расчета

При проведении расчетов использовалась модель реактора ИГР [7], детально описывающая реальную конструкцию, и учитывающая неравномерность распределения концентрации урана в объеме активной зоны. Моделирование ЭУ осуществлялось с соблюдением основных размерно-материальных характеристик. Объединенная расчетная нейтронно-физическая модель экспериментального устройства с конвертером нейтронов и ИГР, описывающая конструкцию и последовательность планируемых событий в эксперименте изображена на рисунке 2. В центральный экспериментальный канал ИГР помещена испытательная секция экспериментального устройства с конвертером нейтронов (поз. 1), защитный корпус с ловушкой расплава (поз.2) и защитная ампула WF (поз. 3).

МЕТОДИКИ РАСЧЕТА МОЩНОСТИ ЭЛЕМЕНТОВ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА

Для расчета энергетических параметров экспериментальных устройств применялись методики, основанные на различных предположениях и допущениях о свойствах поля нейтронов в реакторе. С развитием вычислительного оборудования методики развивались и сейчас можно выделить следующие типы применяемых методик расчета мощности экспериментальных устройств, применявшихся за последние 20 лет.

Методика 1. Базовая методика расчета мощности элементов экспериментального устройства

Простейшей методикой расчета диаграммы мощности топлива или элемента экспериментальной сборки является расчет его удельной мощности по отношению к мощности реактора в начальных условиях проведения эксперимента. Полученное соотношение мощностей предполагается неизменным в течение эксперимента [8].

Расчет выполняется для холодного состояния активной зоны реактора (294 К). Кроме расчетов, как правило, выполняется физический пуск реактора с макетом экспериментального устройства для измерения мощности ядерного топлива. Эти два метода дают хорошее согласие между собой. Простота методов позволяет сделать минимум расчетов в короткие сроки и дает возможность для технико-экономического обоснования пуска. Но для отработки условий проведения экспериментов точности этих методов недостаточно.

Методика 2. Расширенная методика расчета мощности экспериментального устройства с учетом разогрева активной зоны

Данная методика является расширением методики 1. Отличием является проведение серии нейтронно-физических расчетов реактора с экспериментальным устройством [9]. Серия расчетов включает первый расчет согласно методике 1 и дополнительные расчеты горячего состояния реактора в различные моменты пуска. По опыту подготовки экспериментов для этого достаточно расчета десяти состояний реактора. Эти состояния характеризуются положением органов регулирования и средней температурой активной зоны, которая соответствует интегральной мощности. Интерполяция результатов позволяет построить гладкую функцию мощности исследуемого экспериментального устройства и реактора. Это позволяет учесть изменение соотношения мощности экспериментального устройства и реактора при подготовке эксперимента. В зависимости от расположения и композиции исследуемого образца, это соотношение может колебаться в небольших пределах, монотонно увеличиваться или иметь форму параболы в период проведения пуска.

Такой подход позволяет улучшить достоверность получаемых результатов, но для этого требуется в десять раз больше вычислительной мощности и дополнительные мероприятия по подготовке расчетных моделей.

Методика 3. Дополнительная методика расчета мощности реактора с учетом запаздывающего энерговыделения

Энергия ядерных реакций имеет множество составляющих. Значительная доля энергии ядерных реакций преобразуется в тепло не сразу, а после серии распадов активных ядер продуктов деления и продуктов активации. Около 180,88 МэВ преобразуется в тепло за одну миллисекунду после деления ядра урана-235. До 16 МэВ излучаются с падающей интенсивностью в течение длительного времени. Также в реакторе имеются дополнительные источники тепловой энергии, которые образуются при активации ядер нейтронами. В различных реакторах этот вклад может достигать 5 % от энергии деления урана-235.

Механизм расчета мощности с учетом запаздывающего энерговыделения во многом схож с механизмом расчета запаздывающих нейтронов. Стоит отметить, что это не имеет ничего общего с самими запаздывающими нейтронами, максимальное время жизни которых исчисляется секундами. Выделение энергии от распада продуктов деления и активации длится годами, но около половины этой энергии будет выделено в течение десятков секунд. За характерное время пусков на реакторе ИГР.

Методика также является расширением методики 1 и отличается проведением дополнительного нейтронно-физического расчета с учетом запаздывающего выделения энергии. На данный момент результаты расчетов использовались для проведения кинетических расчетов пуска реактора ИГР, учета вклада запаздывающего энерговыделения в разогрев активной зоны и для оценки влияния запаздывающего энерговыделения на элементы экспериментального устройства.

Разработанный подход позволяет улучшить достоверность получаемых результатов, но для выполнения требуется проведение дополнительного расчета с использованием новейшего программного продукта – *MCNP6*.

Методика 4. Продвинутая методика расчета мощности элементов экспериментального устройства.

Данная методика объединяет две предыдущие методики и является завершением разработки методики учета доли запаздывающей мощности при подготовке и анализе реакторных экспериментов.

В рамках методики проводится серия расчетов, включенных в расширенную методику и дублирование этих расчетов с учетом запаздывающего выделения энергии. Расчет множества параметров – отношение мгновенной и запаздывающей мощности реактора и экспериментального устройства – показывает, что каждый из них подвержен изменению в ходе эксперимента. В результате расчетов получается набор из четырех массивов, которые включают в себя данные для различных элементов экспериментального устройства. Их обработка возможна только с использованием специально разработанного программного обеспечения.

На сегодня данная методика позволяет получить наиболее достоверные данные о распределении выделения энергии в экспериментальном устройстве. Ее внедрение для обоснования безопасности проведения экспериментов является безоговорочным прогрессом при решении задач, связанных с расчетным сопровождением реакторных экспериментов.

Ввиду сложности, методика требует в 20 раз больше вычислительной мощности по сравнению с базовой методикой, наличие программы *MCNP6*, поддержки специальной программы для обработки результатов и наличие квалифицированных кадров.

Экспериментальные методики определения энергетических параметров.

Отдельно хочется отметить, что в филиале «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК также существуют и развиваются экспериментальные методики по измерению выделяемой энергии в устройстве во время испытательных пусков реактора. Данные методики позволяют оценить энергетические параметры экспериментальных устройств на основе измерений без разогрева активной зоны или с проведением серии пусков с разогревом активной зоны и экспериментального устройства. Один из подходов к решению задачи определения энергетических параметров испытываемых устройств, основан на использовании результатов измерений теплофизических параметров и решении уравнения теплового баланса [10]. Все подходы также отличаются качеством измерений и количеством затрачиваемых ресурсов.

РАСЧЕТ ДИАГРАММЫ МОЩНОСТИ РЕАКТОРА ИГР для проведения пуска

Эксперимент с конвертором нейтронов ИГР имеет свои специализированные задачи. Для получения необходимых результатов исследования было решено выбрать режим работы «импульс» с максимальным интегральным энерговыделением 5,2 ГДж. Рассчитав отношение энерговыделений по методике 1, была принята предварительная диаграмма реактора со стационарной мощностью 5,2 МВт, позволяющая получить оптимальную диаграмму мощности в испытываемых твэлах, учитывая теплофизические характеристики.

Для более детального расчета графика изменения мощности ИГР во времени была создана программа на языке Visual Basic.Net в программном комплексе Microsoft Visual Studio моделирующая точечную кинетику ИГР. Программа моделирует диаграмму мощности реактора ИГР с учетом движения группы стержней регулирования, и рассчитывает нейтроннофизические параметры пуска, такие как поток нейтронов, мгновенная и запаздывающая мощность реактора, интеграл мощности реактора. Для расчета полной мощности используется система дифференциальных уравнений, учитывающая изменение концентрации источников запаздывающего энерговыделения и система констант для математического описания процесса превращения запаздывающего энерговыделения в тепловую энергию материалов активной зоны и конструктивных элементов испытываемых устройств [11]. Математический алгоритм расчета мощности представлен в [12]. С помощью программы расчета точечной кинетики была смоделирована следующая диаграмма, представленная на рисунке 3.



Рисунок 3. Диаграмма мощности реактора в эксперименте

РЕЗУЛЬТАТЫ РАСЧЕТОВ МОЩНОСТИ Элементов устройства

Были проведены нейтронно-физические расчеты диаграммы мощности ампулы и защитного корпуса с использованием всех четырех расчетных методик. Это позволяет наглядно сравнить различие в результатах расчета при учете различных физических процессов в реакторе.

Результаты расчетов энерговыделения представлены таблице, диаграммы мощностей изображены на рисунке 4. Учитывая отсутствие системы охлаждения ампулы и защитного корпуса с ловушкой расплава, пренебрежение дополнительным энерговыделением подвергает опасности перегрева защитной ампулы.

Таблица. Сравнение значений по методикам

Номер методики	Интегральное удельное энерговыделение, МДж/г		
	Ампула WF	Защитный корпус с ловушкой расплава	
1	86,6	87,3	
2	96 (+10,8 %)	96,5 (+10,5 %)	
3	90,5 (+5 %)	91,9 (+5,2 %)	
4	107 (+23,5 %)	110,3 (+26,3 %)	



Время, с —методика 1 —методика 2 —методика 3 —методика 4 б) защитный корпус

600

800

1000

1200

400

Рисунок 4. Сравнение расчетных методик по нахождению диаграммы удельной мощности объектов экспериментального устройства

Выводы

0

200

На сегодняшний день с помощью методики 4 получаются наиболее близкие к реальности расчетные данные по энерговыделению в испытываемом устройстве. Использование данной методики повышает точность работ по обоснованию безопасного проведения экспериментов на ИГР. В целом, использование комплексных методов, использующих различные способы математического и компьютерного моделирования, на порядок улучшают представительность расчетов.

Несмотря на значительный прогресс в получаемых результатах имеется множество неучтенных факторов, которые могут повлиять на результаты экспери-

мента. Пренебрежение распределением температурного поля активной зоны реактора при проведении нейтронно-физических расчетов дает погрешность при расчете горячего реактора около 1–2 $\beta_{3\varphi\varphi}$ [13]. Разогрев реактора на 1000 °С приводит к удлинению органов регулирования и активной зоны в самых горячих областях на 10 мм.

Следующие шаги улучшения качества расчетного моделирования экспериментов на реакторе ИГР будут связаны с более детальным рассмотрением нестационарных нейтронно-физических и тепловых процессов, происходящих в объеме активной зоны реактора. На сегодня нет предпосылок, что следующие улучшения расчетных методик покажут дополнительный вклад в энерговыделение экспериментальных устройств. Поэтому методика 4 может считаться завершенной с точки зрения потребностей в проведении нейтронно-физических расчетов для обоснования безопасности конструкций экспериментальных устройств. Однако дальнейшее развитие методик позволит проводить детальный анализ реакторных экспериментов на ИГР.

Данная работа выполнена в рамках мероприятия «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан на 2018–2020 годы», бюджетной программы «Развитие атомных энергетических проектов», тема «Исследование поведения твэлов быстрых реакторов в тяжелых авариях».

Литература

- 1. Курчатов И.В. Импульсный графитовый реактор ИГР / Курчатов И.В., Фейнберг С.М., Доллежаль Н.А. и др. // Атомная энергия, 1964, т. 17, вып. 6, с. 463–474.
- 2. Котов В.М., Жанболатов О.М. Конвертор нейтронов для испытания твэлов быстрых реакторов. // Патент на изобретение РК № 33207 от 15.10.2018, бюл. № 40.
- 3. Котов В.М., Жанболатов О.М. Конвертер нейтронов ИГР для испытаний твэлов быстрых реакторов / Котов В.М., Жанболатов О.М. // Вестник НЯЦ РК. 2017. № 1(69). С. 98–102.
- 4. Котов В.М. Изучение возможности проведения экспериментов в реакторе ИГР с твэлом на быстрых нейтронах/ Котов В.М., Жанболатов О.М. // Вестник НЯЦ РК. 2018. № 4(76). С. 18–21.
- Котов В.М. Конвертор тепловых нейтронов в быстрые реактора ИГР. / Котов В.М., Жанболатов О.М. // V Международная научно-техническая конференция «Инновационные проекты и технологии ядерной энергетики». Москва, 2–5 октября 2018, АО «НИКИЭТ». С. 336–342.
- MCNP-5.1.40 Monte-Carlo N-Particle Transport Code: Los Alamos National Laboratory; Los Alamos, New Mexico. April 24, 2003.
- 7. Вурим А.Д., Котов В.М., Иркимбеков Р.А. и др. Компьютерная модель реактора ИГР для стационарных нейтроннофизических расчетов. //А.с. № 2738 PK, 27.12.2016.
- Определение распределения энерговыделения в канале ID3 реактора ИГР / Л.К. Жагипарова, Р.А. Иркимбеков // Актуальные вопросы мирного использования атомной энергии: доклады международной конференции-конкурса молодых ученых и специалистов. Алматы, 06–08 июня 2012 г. – Алматы, 2012. – С. 179–189.
- 9. Энерговыделение в модельной ТВС при тепловых испытаниях в импульсной реакторной установке: дис. канд. физ.-мат. наук.: 01.04.14: защищена 07.10.16 /Р. А. Иркимбеков. НИТПУ. Томск, 2016. 129 с.
- 10. Методика определения энергетических параметров внутриреакторных импульсных экспериментов: дис. канд. физ.-мат. наук.: 01.04.14: защищена 28.12.13 / В.А. Витюк.– НИ ТПУ. Томск, 2013. 129 с.
- 11. Жанболатов О.М. Моделирование точечной кинетики реактора ИГР с учетом временного распределения выделенной энергии деления / Жанболатов О.М., Иркимбеков Р.А. // Вестник НЯЦ РК. 2019. № 3.– С. 59–61.
- 12. Алгоритм решения математической модели точечной кинетики с учетом запаздывающего энерговыделения / Жанболатов О.М., Бакланова О.Е. // 6 Международная научно-техническая конференция студентов, магистрантов и молодых ученых «Творчество молодых инновационному развитию Казахстана», Усть-Каменогорск, 9–10 апреля 2020 г.
- 13. Иркимбеков Р.А. Исследование зависимости значений температурного коэффициента реактивности от физического состояния активной зоны реактора ИГР / Иркимбеков Р.А., Вурим А.Д. // Вестник НЯЦ РК. 2012. № 3. С. 31–37.

ИГР РЕАКТОРДАҒЫ ТЕСТЕРІНІҢ ТӘЖІРИБЕЛІК ҚҰРЫЛЫМЫНЫҢ Элементтерін эсептеу тәртібі

О.М. Жанболатов, Р.А. Иркимбеков

ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада тәжірибелік құрылғы элементтерінің қуатын есептеудің әртүрлі әдістері сипатталған. Әр әдістеменің жағымды және жағымсыз жақтарына салыстырмалы талдау жасалады, есептеу әдістері мен қолдану шектері келтірілген. Орнатыныздың энергетикалық параметрлерін есептеу әдістерін жасау тәжірибелік реактор физикасын дамыту үшін маңызды міндет болып табылады.

FEATURES OF POWER CALCULATION OF EXPERIMENTAL DEVICE ELEMENTS FOR REACTOR TESTS IN THE IGR

O.M. Zhanbolatov, R.A. Irkimbekov

Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article describes various methods for calculating the power of elements of an experimental device. A comparative analysis of the positive and negative sides of each methodology is carried out, methods of calculation and the limits of applicability are presented. The development of methods for calculating the energy parameters of the assembly is an important task for the development of experimental reactor physics.

УДК 53.072.8

ВЛИЯНИЕ ИТЕРАЦИОННЫХ АЛГОРИТМОВ НА КАЧЕСТВО ИЗОБРАЖЕНИЯ И ПОЛУКОЛИЧЕСТВЕННЫЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ НАКОПЛЕНИЯ РФП

Емельяненко Е.В., Тарутин И.Г., Дзюбан А.В.

РНПЦ онкологии и медицинской радиологии им. Н.Н. Александрова, Минск, Беларусь

zheka-ava@mail.ru

Исследовано влияние параметров итерационных алгоритмов реконструкции, использующихся в позитронноэмиссионной томографии, на полуколичественные показатели и качество диагностического изображения в клинических условиях. Получены функции зависимости стандартизированного показателя накопления и метаболического объема от количества итераций и подмножеств. Рассмотрены особенности влияния итерационных алгоритмов реконструкции на образования размером 6 мм. Исследованы 10 пациентов, проведено их сканирование с использованием итерационного алгоритма VPHD с включенной PSF функцией, времяпролетной технологией TOF. Проанализировано влияние указанных параметров сканирования на контраст, шум и соотношение сигнал/шум. Представлены графики зависимости полуколичественных характеристик от количества итераций и подмножеств. Произведена оценка изменения полуколичественных значений накопления радиофармацевтического препарата при варьировании диапазона итераций. Предложены методы оптимизации диагностических протоколов сканирования пациентов. Выполнена проверка полученных результатов на примере диагностического изображения.

Ключевые слова: итерация, подмножество, стандартизированный показатель накопления, шум, контраст.

Введение

Основным преимуществом позитронно-эмиссионной томографии (ПЭТ), совмещенной с компьютерной томографией, является возможность количественного определения накопления радиофармацевтического препарата (РФП). Наиболее распространенным параметром, используемым для измерения накопления РФП в исследованиях ПЭТ, является стандартизированный показатель поглощения (SUV). SVU является полуколичественным показателем нормализованной концентрации РФП на ПЭТ изображениях.

На расчеты SUV существенное влияние оказывает множество факторов, которые на первый взгляд могут казаться незначительными. Учет ограничений, связанных с интерпретацией SUV, имеет важное значение для их корректного использованияр [1].

В процессе описания диагностического изображения по расчетам SUV, но без учета значений реконструкционных параметров, может появиться ряд ошибок. В последствие может быть принято некорректное решение в отношении дальнейших процессов диагностики и лечения пациентов.

Большинство факторов, которые меняют SUV, влияют и на измерение концентрации РФП. Биологические факторы, такие как: уровень глюкозы в крови пациента, поглощение, время трассирующего и дыхательного движений, могут оказать существенное влияние на измерения SUV. Технологические факторы, например, параметры реконструкции, тип итерационного алгоритма, режим сбора данных также имеют немаловажное значение. Таким образом, с целью получения корректной динамической картины развития патологического процесса важно учитывать как можно больше факторов при сканировании одного и того же пациента [2].

Интерес к использованию FDG (фтордезоксиглюкоза) РЕТ для оценки раннего отклика на терапию увеличил значимость количественных измерений. Отклик, обнаруженный с помощью ПЭТ, может предсказать окончательную реакцию на терапию. Визуальная оценка картины распределения РФП с целью оценки первичного отклика на терапию может быть неочевидной, в то время как количественная оценка, такая как SUV, играет существенную роль в получении корректной оценки, сопровождаемой количественными данными. Клинические исследования, проведенные на сегодняшний день, показывают, что большинство опухолей, реагирующих на терапию, показывают снижение SUV на 20-40% в начале курса лечения [3-4]. Это подчеркивает необходимость учета параметров диагностического протокола.

Целью данного исследования является оценка влияния количества итераций на полуколичественные характеристики и качество диагностического ПЭТ изображения.

Факторы, влияющие на полуколичественные характеристики и качество диагностического изображения

Факторы, влияющие на SUV можно разделить на две группы:

а) биологические факторы;

б) технические факторы, зависящие от программного обеспечения и оборудования.

К биологическим факторам относятся: экстравазация, подготовка пациента, время между сканированием и инъекцией, вес пациента, эффект частичного объема.

Подготовка пациента: определяется содержание глюкозы в плазме. Повышенное содержание глюкозы в плазме будет конкурировать с FDG (аналогом глюкозы), уменьшая поглощение (РФП) в опухоли. В конечном итоге, чрезмерное поглощение РФП скелетными мышцами, независимо от этиологии, уменьшает как доступную FDG для поглощения опухоли (уменьшение опухолевого SUV), так и потенциально скрывает повреждения внутри или рядом с этой гиперметаболической мышцей.

Время между сканированием и инъекцией: накопление ФДГ в тканях, как правило, увеличивается как в нормальных, так и в злокачественных тканях, по крайней мере, за 90 минут до начала нормального выведения (некоторые исследования предполагают, что повышение уровня поглощения может занять до 3 часов). Если два сканирования имели существенно разные временные задержки перед сканированием, сравнение SUV может быть полностью ошибочным. Следовательно, соблюдение стандартизированных протоколов визуализации имеет важное значение при ПЭТ / КТ-сканировании (что может быть невозможно, если пациент ранее сканировался в другом учреждении).

Экстравазация (процесс случайного попадания лекарственных препаратов внутрикожно и/или в подкожную клетчатку в месте сосудистого доступа): экстравазированный ФДГ может вызывать ложноположительное поглощение в соседних узлах и сосудах. Кроме того, результирующее уменьшение доступного FDG для кровообращения в организме (и абсорбции в опухоли) может привести к ложноотрицательным результатам [5].

Наиболее распространенными стандартизированными показателями накопления РФП в патологическом очаге, использующиеся в практической деятельности, являются: средний или максимальный SUV всех вокселей (элемент объёмного изображения, содержащий значение элемента растра в трёхмерном пространстве, вокселы являются аналогами двумерных пикселей для трёхмерного пространства) в пределах ROI (SUVmean (среднее) и SUVmax (максимальное), соответственно). SUVmean включает в себя информацию из нескольких вокселей, что делает его менее чувствительным к шуму изображения. Однако измеренное значение SUV будет варьироваться в зависимости от того, какие воксели включены в среднее значение. Таким образом, оно чувствительно к определению ROI и подвержено изменчивости [6]. SUVmax является самым высоким значением воксела в пределах ROI, поэтому не зависит от определения ROI (при условии, что воксел с самой высокой концентрацией активности включен), но более чувствителен к шуму.

К факторам, зависящим от программного обеспечения и оборудования, оказывающим влияние на SUV, относятся: особенности контурирования потенциального патологического очага; коррекция поглощения; параметры реконструкционного алгоритма (количество подмножеств и итераций); включение дополнительных функций (PSF), аксиальные фильтры, времяпролетная технология (time of flight – TOF).

Особенности контурирования. При измерении SUV вокруг области поражения рисуется область интереса (ROI). Важно убедиться, что в эту область интереса входит только поражение. Очень легко непреднамеренно включить смежные гиперметаболические структуры в область интереса (часто наблюдаемую с поражениями рядом с сердцем, мочевым пузырем, печенью или мозгом), ложно увеличивая измеренный SUV.

Коррекция поглощения. В некоторых случаях (как правило, в старых устройствах ПЭТ / КТ) коррекция ослабления изображений ПЭТ может привести к ложно повышенной метаболической активности в областях с высокой плотностью КТ (например, металлические устройства, контраст для полости рта, кальцификация). В таких случаях эти области должны просматриваться на изображениях NAC (без коррекции ослабления). Если эти области также не являются гиперметаболическими на изображениях NAC (серия изображений, реконструированная без коррекции поглощения), то их очевидное повышенное поглощение FDG на изображениях AC является артефактом [7].

Помимо всех рассматриваемых факторов, влияющих на полуколичественные показатели, значительный эффект могут оказывать параметры итерационного алгоритма реконструкции диагностических изображений. В данном исследовании использовался итерационный алгоритм VPHD. Как правило, пользователь использует параметры итерационного алгоритма (итерации и подмножества) для улучшения визуального восприятия диагностического изображения. Также недооценено влияние PSF функции (использующейся по заявлению производителя для улучшения пространственного разрешения) и TOF (времяпролетная технология) на полуколичественные характеристики и качество изображения [8]. Исследования, выполняемые с использованием фантомов, не позволяют в полной мере выполнить качественную оценку изменения полуколичественных показателей в зависимости от параметров реконструкции. Кроме того, фантомы представляют идеальную модель, лишенную всех особенностей, рассматриваемых выше (за исключением эффекта частичного объема). Очевидно, что эффекты, вызванные изменением параметров итерационного алгоритма, будут проявляться на всех патологических очагах (или структурах фантомов, использующиеся для имитации патологических очагов). Однако, наибольший интерес вызывает изучение структур размером 6-8 мм, что соответствует границам пространственного разрешения ПЭТ [9].

Экспериментальные исследования

Исследования выполнялись на аппарате DISCOVERY 710 производства компании General Electric. Для оценки влияния количества итераций на полуколичественные параметры и качество изображения использовались следующие параметры: диапазон итераций 1–10, количество подмножеств (количество наборов свободных проекций) – 32, размерность матрицы 192×192, CUToff (Гауссов фильтр) – 6,4 мм, Z-аксиальный фильтр – отсутствует, threshold 42% (процент из взятого объема области интереса, значение принятое в практической деятельности).

В каждом интервале итераций сохранялись указанные выше параметры, за исключением метода реконструкции и режима сбора данных: VPHD, VPHD+PSF, TOF, TOF+PSF. Где VPHD – итерационный реконструкционный алгоритм (аналог OSEM), PSF – функция, использующаяся для коррекции пространственного разрешения (в соответствии с заявлением производителя), TOF – регистрация части с использованием времяпролетной технологии. Таким образом выполнено 40 реконструкций 1-го исследования (4 изменяемых параметра, 10 итераций). Рассматривался вклад каждого из параметров в качественную и количественную информацию.

Рассматривались также образования, находящиеся в местах, отдаленных от физиологических очагов накопления (почки, головной мозг, мочевой пузырь, сердце т.е. органы, не являющиеся при этом патологическими очагами, но которые накапливают радиофармацевтический препарат).

В ходе исследований были получены серии ПЭТ/КТ изображений. Выполнены измерения следующих параметров:

- 1) значения максимумов объемных активностей;
- 2) значения средних объемных активностей РФП;
- 3) значения ROI (см³);
- 4) стандартное отклонение.

По полученным данным вычислялись контраст и шум. В данной работе контраст и шум вычислялись по формулам (1) и (2):

$$Contrast = \frac{signal - bacg}{bacg},$$
 (1)

Noise =
$$\frac{\delta bcg}{bacg}$$
, (2)

$$SNR = \frac{\text{signal} - \text{bacg}}{\delta \text{bcg}},$$
(3)

где signal – среднее значение объемной активности в интересующей области внутри очага поражения; bacg – среднее значение объемной активности в области, локализованной в однородной области за пределами очага поражения (в данном случае фон рассчитан по отношению к печени); δ bcg – стандартное отклонение значений фона.

В качестве опорного органа для оценки шума использовалась печень. На аксиальной проекции был выделен контур печени и перенесен на ПЭТ изображение. Контуры были перенесены на ПЭТ изображения с применением программного обеспечения с целью минимизации ошибок, связанных с нанесением контура «вручную».

Выполнена оценка изменения шума и контраста на сериях реконструированных изображений Значения шума и контраста представлены в относительных единицах на рисунках 1 и 2.

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В качестве оцениваемых параметров качества рассматривались шум (Noise), контраст (Contrast), соотношение сигнал/шум (SNR). Расчет рассматриваемых параметров качества диагностического изображения выполнен по формулам 1–3. Зависимость шума от количества итераций представлена медианными значениями (рисунок 1).



Рисунок 1. Влияние количества итераций на шум

График (рисунок 1) позволяет наглядно продемонстрировать, что зависимость шума от количества итераций описывается линейной зависимостью с высоким коэффициентом аппроксимации. В результате получены следующие зависимости шума от количества итераций и соответствующие коэффициенты аппроксимации:

1) Noise = 0,0092 · (x) + 0,1282, (коэффициент детерминации R²=0,9, VPHD);

2) Noise = $0,0159 \cdot (x) + 0,0887$, (коэффициент детерминации R²=0,83, VPHD+PSF);

3) Noise = $0,0062 \cdot (x) + 0,1414$, (коэффициент детерминации R²=0,83, TOF);

4) Noise = 0,0134 \cdot (x) + 0,1058, (коэффициент детерминации R²=0,83, TOF+PSF).

С ростом количества итераций увеличивается вклад шумовой компоненты. Зависимость шума от количества итераций аппроксимируется линейной функцией. Зависимость – прямо пропорциональная.

В интервале итераций 1–6 наименьшим значением шума на всем промежутке характеризуются изображения, реконструированные с алгоритмом VPHD с включением PSF функции. Максимальным значениям шума на данном промежутке соответствуют изображения, реконструированные с алгоритмом VPHD без включения PSF функции.

В интервале итераций 6–10 наименьшим значением шума на всем промежутке характеризуются изображения, реконструированные с алгоритмом VPHD и применением времяпролетной технологии без включения PSF функции. Максимальным значениям шума на данном промежутке соответствуют изображения, реконструированные с алгоритмом VPHD.

Получена оценка влияния количества итераций на контраст с учетом реконструкционного алгоритма и метода сбора данных. Зависимость шума от количества итераций представлена медианными значениями (рисунок 2).

Получены следующие уравнения зависимости контраста от количества итераций:

- 1) y=0,2613·ln(x)+1,1777 (R²=0,9496, TOF+PSF);
- 2) y=0,3334·ln(x)+0,9023 (R²=0,8863, VPHD+PSF);
- 3) y=0,094·ln(x)+0,8181 (R²=0,8367, TOF);
- 4) y=0,069·ln(x)+0,7747 (R²=0,7366, VPHD).

Максимальное значение контраста достигается в случае использования метода TOF+PSF. Минимальными значениями контраста на всем рассматриваемом промежутке итераций характеризуются диагностические изображения, реконструированные с алгоритмом VPHD.

Также, стоит отметить, что в случаях, когда PSF функция не используется (VPHD, TOF) после 6-ти итераций последующее увеличение контраста в среднем будет составлять ~0,4–0,5%. Максимальный рост контраста достигается между 2-мя и 3-мя итерациями (~12%).

Исходя из численных данных и визуального исследования диаграмм можно сделать вывод, что определяющий вклад в качество получаемого изображения несет реконструкционный алгоритм и методика получения первичных данных.

Учитывая, что повышение контраста при увеличении количества итераций, сказывается на повышении уровня шума, применение метода времени пролета (с/без функции PSF) позволяет использовать меньшее количество итераций по отношению к изображениям, реконструируемым на сканере не поддерживающих времяпролетную методику. Данный аспект необходимо учитывать при использовании идентичных диагностических протоколов.



Рисунок 2. Влияние количества итераций на контраст

Представленные изображения (рисунки 3 и 4) позволяют визуально оценить разницу в качестве диагностических ПЭТ изображений при значительном увеличении количества итераций.

Диагностическое изображение на рисунке 4 характеризуется как повышенным уровнем контраста, так и уровнем шума, однако очаги накопления РФП приобрели более четкие контуры.

Для анализа влияния количества итераций на значения SNK выполнен расчет SNR (по формуле 3) и построен график зависимости (рисунок 5), где представлена зависимость SNR от количества итераций на примере единичного очага накопления РФП. Аналогичные результаты были получены для каждого рассматриваемого очага у разных пациентов (рас-



Рисунок 3. Трехмерное изображение пациента, 2 итерации

смотрено более 10 очагов).

Оптимальными методами реконструкции, демонстрирующими максимальные значения на всем рассматриваемом промежутке итераций, являются VPHD+PSF и TOF+PSF. После 6 итераций графики переходят в устойчивое плато, что свидетельствует о сведении к минимуму эффективности более 6 итераций. Т.к. в качестве фоновых значений использовались SUV печени (которая является физиологическим очагом накопления РФП, а, следовательно, имеет высокий уровень шума) часть значений SNR находятся в отрицательной области. Данный пример является показательным для визуализации патологий малого размера (менее 6 мм) в области печени.



Рисунок 4. Трехмерное изображение пациента, 10 итераций



Рисунок 5. Влияние количества итераций на SNR с учетом метода реконструкции

Влияние количества итераций на полуколичественные характеристики

Выполнена оценка влияния количества итераций в диапазоне от 1 до 10 на значения SUVmax, SUVmean, объем ROI.

Анализ влияния количества итераций на SUVmax и SUVmean показал, что данные величины логарифмически возрастают при увеличении числа итераций. Было проанализировано 20 патологических очагов размерами 6-8мм (измерение выполнено на серии КТ изображений). Вычислено процентное изменение стандартизированных показателей накопления РФП при изменении диапазона итераций. На рисунках 6 и 7 изображены графики функциональной зависимости изменения (между итерациями) SUVmax и SUVmean в зависимости от числа итераций с учетом дополнительного включения PSF функции и времяпролетной технологии. Графики демонстрируют монотонное убывание процентного соотношения стандартизированного показателя накопления при последовательном увеличении количества итераций. Увеличение количества итераций приводит к росту SUV, однако с каждой итерацией процентное соотношение дельты (увеличения между соседними диапазонами) будет уменьшаться.

Для получения функциональных зависимостей использован следующий метод расчета:

1) выбраны очаги накопления размерами 6-8 мм (максимальные длины диагоналей)

2) вычислено изменение SUV при последовательном изменении числа итераций начиная с двух (2–3, 3–4, 4–5, 5–6, 6–7, 7–8, 8–9, 9–10) для каждого очага;

 для каждой пары итераций рассчитано медианное значение;

4) каждая приведенная пара в п. 2 соответствует точке на графиках (рисунки 6 и 7).

Получены следующие уравнения зависимости изменения SUVmax (при последовательном изменении числа итераций) от числа итераций с соответствующими коэффициентами аппроксимации:

1) $y=19,512 \cdot x^{-1,254}$ (R²=0,9823, VPHD + PSF);

2) $y=14,447 \cdot x^{-1,575}$ (R²=0,9823, TOF+PSF);

3) $y=1,7655 \cdot x^{-1,255}$ (R²=0,8752, TOF);

4) $y=4,5036 \cdot x^{-1,255}$ (R²=0,9933, VPHD).

Высокое значение коэффициентов аппроксимации является показателем высокой достоверности подобранной аппроксимирующей функции.

Максимальное колебание SUV отмечается в диапазоне 2–3–4 итерации для итерационного алгоритма VPHD с включенной PSF функцией. В диапазоне 6–10 итераций колебания SUVmax составляют менее 1%.

Аналогично получены результаты для SUVmean (рисунок 7).

В результате получены следующие уравнения зависимости колебания SUVmean (при последовательном изменении числа итераций) от числа итераций с соответствующими коэффициентами аппроксимации:

- 1) $y=36,852 \cdot x^{-1,962}$ (R²=0,9333, VPHD + PSF);
- 2) $y=18,931 \cdot x^{-1,916}$ (R²=0,9217, TOF+PSF);
- 3) $y=4,085 \cdot x^{-1,146}$ (R²=0,6093, VPHD);
- 4) $y=2,6023 \cdot x^{-1,64}$ (R²=0,915, TOF).

Для проверки полученных результатов (влияния количества итераций на значение SUV max) был выбран пациент с множественными поражениями лимфатических узлов. Выполнены реконструкции диагностических изображений (выбранного пациента) в интервале от 2 до 6 итераций. Использовалась описанная выше методика «снятия данных». Выбраны трудно детектируемые очаги размерами 6×8 мм и 6×7 мм.



Рисунок 6. Изменение SUVmax в зависимости от числа итераций



Рисунок 7. Изменение SUVmean в зависимости от числа итераций

В таблице представлены результаты расчета изменения SUVmax в зависимости от перехода между количеством итераций (в столбцах «Очаг 1» и «Очаг 2» внесена разница (%) измеренных на диагностических изображениях значений SUVmax, в столбце «Расчетное значение (по функциям)» внесены результаты расчета изменения SUVmax, полученные с использованием представленных выше функциональных зависимостей).

Итерации	Метод реконструкции	Очаг 1	Очаг 2	Расчетное значение (по функциям)
2–3	VPHD PSF ON	16,69	21,33	19,51
3–4	VPHD PSF ON	8,48	9,62	8,29
4–5	VPHD PSF ON	5,46	5,26	5,03
5–6	VPHD PSF ON	3,92	3,39	3,53
2–3	TOF PSF ON	10,03	8,32	18,93
3–4	TOF PSF ON	5,51	4,30	5,02
4–5	TOF PSF ON	3,70	2,99	2,31
5–6	TOF PSF ON	2,73	2,30	2,30
2–3	TOF PSF OFF	3,57	3,11	4,11
3–4	TOF PSF OFF	1,95	1,67	1,31
4–5	TOF PSF OFF	1,18	1,01	0,68
5–6	TOF PSF OFF	0,83	0,71	0,43
2–3	VPHD PSF OF	4,88	8,36	4,09
3–4	VPHD PSF OF	2,26	2,70	1,85
4–5	VPHD PSF OF	1,43	1,20	1,16
5–6	VPHD PSF OF	1,09	0,74	0,83

Таблица. Оценка соответствия

Полученные функциональные зависимости и данные об изменении SUV (%) позволяют предсказать изменение SUV при увеличении числа итераций, что может быть полезно при повторном сканировании пациента с целью оценки динамики.

SUVmax наиболее удобно измерять, окружая поражение мишени 3D ROI (область интереса), стараясь не включать посторонние области высокой активности, например, такие, как мочевой пузырь. В случае использование 2D ROI, контурирование целесообразно выполнять на нескольких осевых срезах, чтобы определить самую высокую активность в пределах области интереса.

В настоящее время показатель SUVmax используется чаще всего, потому что он менее зависим от наблюдателя и является наиболее воспроизводимым по сравнению с показателем SUVmean. Однако использование обоих позволит дать наиболее точную оценку динамики процесса.

Анализ динамики метаболического объема показал, что при увеличении числа итераций метаболический объем патологического очага будет уменьшаться. Данная зависимость с наибольшим коэффициентом аппроксимации описывается степенной функцией. В качестве примера приведены изменения одного метаболического очага в зависимости от количества используемого числа итераций (рисунок 8) для каждого из рассматриваемых случаев реконструкции.

Значительные колебания (спад) метаболического объема характерны в диапазоне 2–4 итераций (в частности переход с 2 на 3 итерации) для методов VPHD и VPHD+PSF.

Нецелесообразно использование итерационного алгоритма VPHD без включения PSF функции. В данном случае метаболический объем патологического очага варьируется от 1,2 см³ до 1,4 см³, что свидетельствует о некорректном автоматическом сегментировании.

Исходя из полученных значений и анализа зависимости метаболического объема от количества итераций (рисунок 8), можно сделать вывод, что для каждого из рассмотренных случаев реконструкции характерно значительное изменение метаболического объема в интервале от 2 до 6 итерации, последующее увеличение количества итераций приводит к незна-



Рисунок 8. Зависимость метаболического объема от количества итераций

чительному уменьшению метаболического объема (1–5%). Разница метаболического объема между VPHD и остальными рассматриваемыми методами реконструкции на каждой итерации составляет более 50%.

Отмечается влияние PSF функции на метаболический объем (уменьшение) и формировании более четкого контура патологического очага.

Заключение

Различия в значениях SUVmax, вероятно, были обусловлены шумом, который увеличивался с увеличением количества итеративных обновлений, а также повышением разрешения и восстановления высокочастотных характеристик (т. е. неоднородности опухоли) с большим числом итераций. Учитывая продолжающиеся с итерациями изменения SUV, следует проявлять осторожность при выборе количества итераций для оценки отклика патологии на проведенную терапию.

В клинических условиях наиболее целесообразно использовать диапазон от 2 до 6 итераций. Продолжая увеличивать количество итераций после 6-ти, SNR выходит на устойчивое плато, шум продолжает расти быстрее, чем контраст. При этом значения контраста также постепенно выходят на плато и с каждой итерацией изменяются на несколько процентов.

Общими закономерностями влияния количества итераций на количественные значения SUV и качество изображения являются:

 увеличение стандартизированного показателя накопления с уменьшением дельты при переходе от итерации к итерации,

 уменьшением метаболического объема, возрастанием контраста, сопровождающегося линейным ростом шума,

 изменение соотношения сигнал/шум (очага накопления РФП).

При использовании сканеров, не поддерживающих технологию TOF (с идентичной системой кристаллов - BGO), необходимо учитывать повышенное значение шума по умолчанию, по отношению к изображениям, полученным с TOF+PSF.

Оптимальным вариантом является использование PSF функции (как с алгоритмом VPHD, так и в случае применения времяпролетной технологии) для коррекции пространственного разрешения, повышения контраста и редуцирования шума.

Литература

- 1. Recent developments in time-of-flight PET / S. Vandenberghe [et al.] // EJNMMI Phys. 2016. Vol. 3, № 1. P. 3.
- 2. Iterative reconstruction algorithms in nuclear medicine / S. Vandenberghe [et al.] // Computerized Medical Imaging and Graphics. 2001. Vol. 25, № 2. P. 105–111.
- 3. Quantification, improvement, and harmonization of small lesion detection with state-of-the-art PET / C.S. van der Vos [et al.] // Eur J Nucl Med Mol Imaging. 2017. Vol. 44, № S1. P. 4–16.
- Comparison among Reconstruction Algorithms for Quantitative Analysis of ¹¹ C-Acetate Cardiac PET Imaging / X. Shi [et al.] // Contrast Media & Molecular Imaging. – 2018. – Vol. 2018 – P. 1–10.
- 5. Standard OSEM vs. regularized PET image reconstruction: qualitative and quantitative comparison using phantom data and various clinical radiopharmaceuticals / J. Lantos [et al.] P. 9.

- Benefit of Time-of-Flight in PET: Experimental and Clinical Results / J.S. Karp [et al.] // Journal of Nuclear Medicine. 2008. Vol. 49, № 3. – P. 462–470.
- Feasibility of state of the art PET/CT systems performance harmonisation / A. Kaalep [et al.] // Eur J Nucl Med Mol Imaging. 2018. – Vol. 45, № 8. – P. 1344–1361.
- 8. Alessio, A.M. Improved quantitation for PET/CT image reconstruction with system modeling and anatomical priors / A.M. Alessio, P.E. Kinahan // Med Phys. 2006. Vol. 33, № 11. P. 4095–4103.
- 9. Optimization of PET/CT image quality using the GE "Sharp IR" point-spread function reconstruction algorithm / N.J. Vennart [et al.] // Nuclear Medicine Communications. 2017. Vol. 38, № 6. P. 471–479.

ИТЕРАЦИЯЛЫҚ АЛГОРИТМДЕРДІҢ КЕСКІН САПАСЫНА ЖӘНЕ РФП ЖИНАҚТАЛУЫНЫҢ ЖАРТЫЛАЙ САНДЫҚ СИПАТТАМАЛАРЫНА ӘСЕРІ

Е.В. Емельяненко, И.Г. Тарутин, А.В. Дзюбан

Н. Н. Александров атындағы Республикалық онкология және медициналық радиология ғылыми-практикалық орталығы, Минск, Беларусь

Позитронды эмиссиялық томографияда қолданылатын итерациялық реконструкция алгоритмдері параметрлерінің клиникалық жағдайда жартылай сандық көрсеткіштерге және диагностикалық кескіннің сапасына әсері зерттелді. Стандартталған жинақтау көрсеткіші мен метаболикалық көлемнің итерациялар мен ішкі жиындар санына тәуелділік функциялары алынды. Итерациялық реконструкция алгоритмдерінің өлшемі 6 мм болатын пайда болған түзілімдерге әсер ету ерекшеліктері қарастырылады. 10 емделуші тексерілді, оларды сканерлеу PSF функциясы қосылған VPHD итерациялық алгоритмін қолдана отырып, TOF уақыттық технологиясы арқылы жүргізілді. Көрсетілген сканерлеу параметрлерінің контрастқа, шуға және сигнал/шу қатынасына әсері талданады. Жартылай сандық сипаттамалардың итерациялар мен ішкі жиындар санына тәуелділік кестелері ұсынылған. Итерация диапазонын түрлендіру кезінде радиофармацевтикалық препараттың жинақталуының жартылай сандық мәндерінің өзгеруіне баға берілді. Емделушілерді сканерлеудің диагностикалық хаттамаларын оңтайландыру әдістері ұсынылған. Алынған нәтижелерге диагностикалық кескін үлгісінде тексері жүргізілді.

Кілт сөздер: итерация, ішкі жиындар, стандартталған жинақтау көрсеткіші, шу, контраст.

INFLUENCE OF ITERATIVE ALGORITHMS ON IMAGE QUALITY AND SEMI-QUANTITATIVE CHARACTERISTICS OF RADIOPHARMACEUTICAL

E. Emelyanenko, I. Tarutin, A. Dzyuban

N.N. Alexandrov National Cancer Centre of Belarus, Minsk, Belarus

The influence of parameters of iterative reconstruction algorithms used in positron emission tomography on semiquantitative indicators and the quality of a diagnostic image in a clinical setting is investigated. The functions of the dependence of the standardized accumulation index and metabolic volume on the number of iterations are obtained. Peculiarities of the influence of iterative reconstruction algorithms on formations with a size of 6–8 mm are considered. We examined 10 patients scanned using the iterative VPHD algorithm with the PSF function turned on, time-of-flight TOF technology using the PSF function. The influence of the indicated scanning parameters on contrast, noise, and signalto-noise ratio is analyzed. Graphs of the dependence of semi-quantitative characteristics on the number of iterations and subsets are presented. The change in semiquantitative values was estimated by varying the range of iterations and subsets. Methods for optimizing diagnostic protocols for scanning patients are proposed.

Keywords: iteration, subset, standardized accumulation index, noise, contrast.

ВЛИЯНИЕ СПОСОБА ФОРМИРОВАНИЯ ДЕФЕКТОВ НА СВОЙСТВА ПРОТОННЫХ ПРОВОДНИКОВ НА ОСНОВЕ СКАНДАТА ЛАНТАНА

Хромушин И.В., Аксенова Т.И.

РГП «Институт ядерной физики», Алматы, Казахстан

Изучены структура и свойства протонных проводников на основе LaScO₃, синтезированных путем акцепторного допирования и создания дефицита по катиону La. Показано, что количество интеркалированных в решетку оксида протонов растет с ростом степени катионного допирования и выше при допировании стронцием, чем кальцием. Замечено, что в образцах скандата лантана с катионной нестехиометрией количество интеркалированных протонов уменьшается с ростом дефицита по лантану, что вероятно обусловлено возможностью связывания кислородных вакансий $V_0^{"}$ в комплексы типа (La["]_{La} – $V_0^{"}$)' и блокированием их участия в процессе растворения воды. Определены энергии активации проводимости объема и границ зерен скандата лантана, синтезированного различными методами. Показано, что проводимость и энергия активации проводимости объема зерен образцов, допированных стронцием, выше, чем при допировании кальцием. Замечено, что энергия активации проводимости образцов с катионной нестехиометрией практически не зависит от дефицита по лантану.

Введение

Применение ископаемого топлива для производства электроэнергии не может удовлетворить постоянно растущее энергопотребление и наносит непоправимый экологический урон всей природе за счет выбросов вредных газов в атмосферу. Будущее мировой энергетики и Казахстана, в частности, должно быть связано с реализацией эффективных и экологически чистых технологий выработки электроэнергии [1]. С этой точки зрения развитие водородной энергетики и разработка высокоэффективных топливных элементов представляют собой ключевые моменты, необходимые для перехода к возобновляемым источникам энергии.

Топливные элементы (ТЭ) – устройства, позволяющие непосредственно преобразовывать химическую энергию топлива в электрическую с высоким КПД и минимальными выбросами вредных веществ в атмосферу. В качестве рабочего электролита в ТЭ рассматриваются неорганические гидраты оснований, кислот, солей и оксидов, а также полимерные материалы и т.д. Наиболее перспективными являются твердооксидные топливные элементы (ТОТЭ), которые обладают рядом преимуществ, таких как использование керамических электролитов (что исключает коррозионное воздействие) и возможность выбора широкого ряда органического топлива (водород, метан, пропан, синтез-газ и т.д.).

В настоящее время электроэнергия, выработанная с помощью ТЭ, к сожалению, имеет достаточно высокую себестоимость, поэтому ведутся активные исследования с целью повышения эффективности ТЭ и снижения себестоимости электроэнергии. Следует отметить, что исследования проводятся в разных направлениях, основными из которых являются развитие и модернизация ТОТЭ и создание новых электролитов, обладающих оптимальными физико-химическими и электрохимическими характеристиками. Среди твердооксидных электролитов наибольший интерес представляют сложные оксиды со структурой перовскита A²⁺B⁴⁺O₃, к которым относятся, например, цераты бария и стронция, являющиеся протонными проводниками [2]. Достигнуть высокой протонной проводимости в данных материалах удается за счет кислородной разупорядоченности, т.е., за счет структурных или примесных кислородных вакансий. Взаимодействие последних с водородосодержащей средой приводит к появлению в оксиде протонных дефектов и, соответственно, протонной проводимости.

Наиболее распространенным способом формирования примесных кислородных вакансий является так называемое акцепторное допирование, т.е., частичное замещение четырехвалентного катиона в позиции B⁴⁺ катионом трехвалентного редкоземельного элемента Re³⁺. При этом образуются кислородные вакансии V_o[•] с эффективным зарядом +2, концентрация которых равна V_o[•] = x/2, где x – концентрация катиона-допанта Re³⁺ [3].

Процесс растворения воды и образования протонных дефектов в допированном оксиде может быть описан следующим уравнением:

$$H_2O + V_0^* + O_0^x = 2OH_0^*$$
. (1)

В последние годы повышенный интерес привлекают эквимолярные соединения типа $A^{3+}B^{3+}O_3$, например, скандаты лантана LaScO₃, также имеющие перовскитную структуру, но обладающие более высокой химической стабильностью в отношении диоксида углерода по сравнению с цератами бария и стронция. Для придания протон проводящих свойств этим материалам также используют частичное замещение катиона A^{3+} или B^{3+} катионом двухвалентного металла M^{2+} . В результате такого допирования также образуются кислородные вакансии V_0^{\star} [4, 5].

Ранее при исследовании скандатов лантана было высказано предложение о создании кислородных вакансий не акцепторным допированием, а посредством создания дефицита по одному из катионов в процессе синтеза [6]. В этом случае при дефиците трехвалентного катиона Sc (либо La) могут образоваться вакансии $V_{Sc}^{"}$ ($V_{La}^{"}$) и одновременно вакансии кислорода V. . Причем такой способ формирования вакансий кислорода должен быть эффективнее, чем при акцепторном допировании. Действительно, каждой вакансии скандия (или La) будет соответствовать 1,5 V₀, в то время как при акцепторном замещении скандия катионом M^{2+} появляется только 0,5 $V_0^{"}$ [7]. Более высокая концентрация вакансий кислорода должна привести к более высокому содержанию протонов. Но такой способ задания вакансий возможен только для структур, допускающих существенные отклонения от стехиометрии [8].

В настоящее время электролиты на основе скандата лантана изучены мало, и пока нет однозначного ответа на вопрос, какой способ создания кислородной разупорядоченности более эффективен. Поэтому целью данной работы является проведение сравнительных исследований свойств скандата лантана, синтезированного посредством акцепторного допирования и путем создания дефицита по одному из катионов.

Объекты исследований и методы измерений

Объектами исследований являются керамические образцы скандата лантана LaScO₃, допированные кальцием и стронцием (x = 0; 0,05 и 0,1), а также образцы скандата лантана с дефицитом по лантану. Синтез материалов на основе LaScO₃ проводили методом сжигания [9].

В результате синтеза посредством акцепторного допирования были получены следующие составы: LaScO₃, La_{0.95}Sr_{0.05}ScO_{2.975}, La_{0.9}Sr_{0.1}ScO_{2.95}, La_{0.95}Ca_{0.05}ScO_{2.975}, La_{0.9}Ca_{0.1}ScO_{2.95}. Посредством создания дефицита по La были синтезированы следующие составы: La_{0.97}ScO_{2.955}, La_{0.95}ScO_{2.925}, La_{0.9}ScO_{2.85}.

Образцы LaScO₃, синтезированные обоими способами, представляли собой керамические таблетки диаметром 11 и толщиной 1,5 мм. Исследования были выполнены на образцах без предварительного отжига и отожженных на воздухе при температуре 500 °C в течение 8 часов. Часть образцов подвергали гидратированию в парах воды при температурах 500 и 350 °C. Парциальное давление паров воды в процессе гидратации составляло 2,65 кПа и поддерживалось пробулькиванием воздуха в барбатере с водой с помощью компрессора, прокачивающего увлажненный воздух по замкнутому контуру.

Структура и состояние поверхности синтезированного LaScO₃ были исследованы методами рентгенофазового анализа (дифрактометр X'PERT PRO) и сканирующей электронной микроскопии (низковакуумный растровый электронный микроскоп JEOL JSM-6490 LA). Элементный анализ поверхности выполнен с использованием энергодисперсионного анализатора Oxford Instruments. Термодесорбционные исследования и термогравиметрический анализ проведены на термодесорбционной установке с радиочастотным масс-спектрометром MX-7304 и термоанализаторе EXSTAR-6300. Электрофизические свойства LaScO₃ изучены методом электрохимической импедансной спектроскопии с использованием потенциостата/гальваностата P-45X с частотным анализатором FRA-24M.

Результаты и обсуждение Рентгенофазовые исследования

Рентгенофазовый анализ показал, что скандаты лантана, синтезированные посредством акцепторного допирования, являются однофазными и имеют перовскитную структуру орторомбического типа с пространственной группой *Pnma*. На рисунке 1 представлены дифрактограммы образцов скандата лантана, допированных кальцием, в сравнении с базовым соединением LaScO₃.



 $1-LaScO_{3};\,2-La_{0,9}Ca_{0,1}ScO_{2,95};\,3-La_{0,95}Ca_{0,05}ScO_{2,975}$

Рисунок 1. Дифрактограммы образцов LaScO₃, допированного Ca

Дифрактограммы образцов скандата лантана, допированного стронцием, идентичны дифрактограммам LaScO₃, допированного Ca.

Микроанализ исследованных образцов скандата лантана показал, что состав материалов соответствовал их ожидаемой стехиометрии, а распределение элементов на поверхности оксидов (таблицы 1 и 2) достаточно равномерное.

В качестве примера на рисунках 2, а и 3, а приведены микрофотографии поверхностей образцов скандата лантана (недопированного и допированного стронцием) с указанием участков, на которых выполнялся энергодисперсионный анализ (рисунки 2, б и 3, б).
Элемент	Спектр 1	Спектр 2	Спектр 3
0	57,78	60,17	63,25
Sc	21,21	19,89	18,43
La	21,01	19,94	18,33
Сумма	100,00	100,00	100,00

Таблица 1. Результаты энергодисперсионного анализа
поперечного шлифа образца LaScO3

Таблица 2. Результаты энергодисперсионного анализа поперечного шлифа образца La0,9Sr0,1ScO2,95

Элемент	Спектр 7	Спектр 8	Спектр 9	Спектр 10
0	59,19	60,68	55,98	62,24
Sc	20,48	20,10	22,37	19,04
Sr	1,60 1,70		1,66	1,71
La	18,35	17,53	19,98	17,02
Сумма	100,00	100,00	100,00	100,00



a)



б)

Рисунок 2. Микрофотография поперечного шлифа керамического образца LaScO3 при увеличении x2000 (a) и энергодисперсионный спектр LaScO3 (б)

Для образцов, допированных кальцием (x=5%), также наблюдается равномерное распределение элементов и соответствие заданной стехиометрии. Однако на допированных образцах состава La_{0,9}Ca_{0,1}ScO_{2,95} обнаружено наличие кальций-обогащенной фазы, а содержание кальция в основной фазе меньше стехиометрического, несмотря на то, что рентгенофазовый анализ свидетельствовал об однофазности данного состава.

Что касается образцов с дефицитом по одному из катионов, то согласно литературным данным [10] в случае дефицита по скандию вплоть до 10 мол.% дифрактограммы практически не отличаются от дифрактограмм базового состава LaScO₃, из чего сделан вывод, что материал сохраняет перовскитную структуру бездефицитного образца. При исследовании структуры образцов с дефицитом по La (x=0,05; 0,1) нами показано, что для состава La0.95ScO2.925 наблюдается полное соответствие дифрактограммы дефицитного образца и базового соединения LaScO₃, тогда как дифрактограмма La0.9ScO2.85 существенно отличается от дифрактограммы LaScO₃ (рисунок 4). Это может означать, что при дефиците по лантану около 10 мол.% материал испытывает фазовый переход.





б)

Рисунок 3. Микрофотография поперечного шлифа керамического образца La0,9Sr0,1ScO2,95 при увеличении x10 000 (a) и энергодисперсионный спектр La0,9Sr0,1ScO2,95 (б)

Электронно-микроскопические исследования образцов LaScO₃, синтезированных путем акцепторного допирования, показали, что поверхность допированного скандата лантана представляет собой структуру из плотно упакованных гранул размером 1–5 микрон. Следует отметить, что в случае допирования Са доминируют крупные гранулы с ярко выраженными ступенчатыми шестигранниками (рисунок 5).

Что касается скандата лантана с дефицитом по лантану 10%, электронно-микроскопические исследования, подобно рентгенофазовому анализу, выявили аномальную картину, и гранулярная структура не была обнаружена.



20, град.

Рисунок 4. Дифрактограммы порошков LaScO3, La0,95ScO2,925, La0,9ScO2,85





б)

Рисунок 5. Электронно-микроскопические снимки (увеличение x10 000) поверхности образцов La0,9Ca0,1ScO2,95 (a) и La0,9Sr0,1ScO2,95 (б)

Термодесорбционные исследования скандата лантана

Для исследования состояния газовых компонент в скандатах лантана были изучены процессы термодесорбции газов из данных материалов в вакуум при их нагреве. Исследования выполнены на термодесорбционной установке для изучения газовыделения из твердых тел, детальное описание которой представлено в работе [11]. Основные параметры установки: рабочий вакуум 10⁻⁸ мм. рт. ст., возможность одновременной регистрации до 6 масс, скорость нагрева образцов 42 К/мин.

В ходе эксперимента регистрировали выход молекул воды, диоксида углерода, кислорода и водорода из образцов скандата лантана, недопированного и допированного кальцием и стронцием (x = 0,05 и 0,1). При этом были исследованы неотожженные образцы, выдержанные на воздухе в лабораторных условиях в течение 2-х месяцев после их синтеза, и образцы, подвергнутые предварительному гидратированию в замкнутом контуре при температуре 500 °С и давлении паров воды 2,65 кПа.

Показано, что на неотожженных допированных образцах имел место незначительный выход молекулярной воды и диоксида углерода. При этом количество десорбированной воды зависело от степени допирования и увеличивалось с ростом концентрации допанта *х*. Кроме того установлено, что количество десорбированной воды при допировании скандата лантана стронцием было выше, чем при допировании кальцием при одинаковых степенях допирования. В то же время температура максимума скорости десорбции при допировании кальцием выше, чем при допировании стронцием.

Одной из основных задач при исследовании новых материалов электролитов является оценка их способности интеркалировать протоны в диапазоне рабочих температур. В связи с этим были исследованы образцы скандата лантана, допированного стронцием и кальцием, подвергнутые предварительному гидратированию.

Как отмечалось ранее [3], в процессе акцепторного допирования имеет место замещение трехвалентного катиона лантана на двухвалентный катион кальция или стронция и образование кислородных вакансий согласно уравнениям:

$$CaO(-LaO_{1,5}) \rightarrow Ca'_{La} + 1/2 V_{O}^{*} + O_{O}^{x},$$

$$SrO(-LaO_{1,5}) \rightarrow Sr'_{La} + 1/2 V_{O}^{*} + O_{O}^{x},$$
(2)

где Ca'_{La}, Sr'_{La} – ионы кальция или стронция в позициях лантана в кристаллической решетке.

Отжиг допированных образцов в парах воды способствует растворению воды и интеркаляции протонов в решетку оксида согласно уравнению (1). В ходе термодесорбционного эксперимента при линейном нагреве гидратированного образца в вакууме процессы в уравнении (1) идут справа налево, и в спектрах термодесорбции таких образцов наблюдается выход воды. На рисунке 6 представлены спектры выхода воды из гидратированных образцов скандата лантана.



1 - LaScO₃; 2 - La_{0,95}Ca_{0,05}ScO_{2,975}; 3 - La_{0,9}Ca_{0,1}ScO_{2,95}; 4 - La_{0,9}Sr_{0,1}ScO_{2,95}

Рисунок 6. Спектры выхода воды из гидратированных образцов скандата лантана, синтезированных посредством акцепторного допирования

Как видно из рисунка 6, на недопированном образце выхода воды практически не наблюдалось. В процессе гидратирования имела место дополнительная интеркаляция воды в решетку скандата лантана, допированного стронцием и кальцием. Оказалось, что количество десорбированной воды, пропорциональное содержанию протонов, зависит от типа допанта и увеличивается с ростом степени допирования. Так, количество интеркалированных протонов в случае скандата лантана, допированного стронцием, было существенно больше, чем при допировании кальцием при тех же концентрациях допанта. В то же время температура максимума скорости десорбции при допировании кальцием была выше, чем при допировании стронцием.

При этом следует отметить такой важный факт, что в случае допирования скандата лантана кальцием (Са 10%) в спектрах термодесорбции наблюдали выход диоксида углерода, тогда как на всех остальных составах выхода диоксида углерода не было обнаружено (рисунок 7).

Такое различие в характере ТД спектров скандата лантана с разным допантом может быть обусловлено тем, что при допировании кальцием (10%), согласно электронно-микроскопическим данным, имело место выпадение кальция в отдельную фазу [12]. При этом концентрация кальция в основной фазе должна быть ниже стехиометрической, а, следовательно, и концентрация кислородных вакансий должна быть ниже ожидаемой. Последнее приводит к уменьшению концентрации интеркалированных протонов. В то же время кальций-содержащая фаза взаимодействует с атмосферным диоксидом углерода, о чем свидетельствует обнаруженный выход CO₂ из данной керамики при нагреве.



 $\begin{array}{l} 1-La_{0,9}Sr_{0,1}ScO_{2,95}; \ 2-La_{0,9}Ca_{0,1}ScO_{2,95}; \\ 3-La_{0,9}S \ Sr_{0,05}ScO_{2,975}; \ 4-La_{0,9}ScO_{0,05}ScO_{2,975} \end{array}$



Термодесорбционные эксперименты были проведены также на образцах скандата лантана с дефицитом по лантану: La_{0,97}ScO_{2,955}; La_{0,95}ScO_{2,925}; La_{0,9}ScO_{2,85}, Образцы предварительно подвергали процедуре гидратирования, аналогичной гидратированию допированных скандатов. На рисунках 8 и 9 представлены спектры термодесорбции H₂O и CO₂ из образцов гидратированного скандата лантана с дефицитом по лантану.

Как видно из рисунка 8, лишь незначительное количество воды выделяется из образцов LaScO3 и La0,9ScO3-6. Отсутствие воды в термодесобционном спектре LaScO₃ вполне объяснимо, поскольку в бездефицитных образцах практически отсутствуют кислородные вакансии, обеспечивающие растворение воды в керамике. Что же касается дефицитной керамики, то, вероятно, при дефиците по La ~10 мол.% структура материала перестает быть перовскитной. Как уже отмечалось выше, согласно работе [7], задание кислородных вакансий в решетке оксидов за счет дефицита по одному из катионов возможно только для структур, допускающих существенные отклонения от стехиометрии без образования примесных фаз. На основе полученных экспериментальных результатов и имеющихся литературных данных можно сделать вывод, что в скандате лантана создание дефицита по скандию не приводит к нарушению перовскитной структуры, тогда как отклонения от стехиометрии в подрешетке лантана сопровождаются необратимыми структурными изменениями, что приводит к уменьшению концентрации кислородных вакансий. Кроме того, существенную роль в снижении концентрации растворенных протонов в подобных образцах, вероятно, играет сильное взаимодействие между заряженными дефектами при дефиците катиона лантана выше некоторого значения. Действительно, отрицательно заряженные вакансии лантана La["]_{La} способны связывать кислородные вакансии в комплексы типа (La["]_{La} – V₀")' и блокировать их участие в процессе растворения воды. Подтверждением данного вывода является тот факт, что количество воды, выходящей из La_{0.97}ScO_{3-δ}, оказалось больше, чем из образцов La_{0.95}ScO_{3-δ}.



1 - LaScO3; 2 - La0,97ScO2,955; 3 - La0,95ScO2,925; 4 - La0,9ScO2,85

Рисунок 8. Спектры выхода воды из гидратированных образцов скандата лантана, синтезированных посредством создания дефицита по лантану

На рисунке 9 приведены спектры выхода CO₂ из дефицитных по лантану образцов. Видно, что количество десорбированного CO₂ незначительно и уменьшается с ростом степени дефицита лантана. Следует также отметить, что вид спектров выхода CO₂ из образцов скандата лантана, синтезированных посредством акцепторного допирования и создания дефицита по катиону, различен, что свидетельствует о различиях в природе взаимодействия этих материалов с CO₂.

Результаты термодесорбционных исследований согласуются с данными термогравиметрических исследований, проведенных на твердых образцах допированного скандата лантана и скандата с дефицитом по лантану в диапазоне температур от 20 до 1200 °C. Так, на образцах, допированных Sr и Ca (x=0,1), при температурах выше 500 °C наблюдалась потеря массы. При этом в случае допирования образца кальцием потеря массы имела место при более высокой температуре, что согласуется с данными ТДС. На образцах гидратированного скандата лантана с дефицитом по лантану не выявили потери массы в диапазоне температур от 20 до 1200 °C. Только на образцах состава La_{0,97}SCO_{3-δ} была обнаружена потеря массы, что также не противоречит результатам термодесорбции.

Таким образом, из данных дифференциального термического анализа следует, что потеря массы об-

разцами скандата лантана является эндотермическим процессом, а образцы всех составов имеют высокую термическую стабильность, о чем свидетельствует отсутствие фазовых переходов в исследованном диапазоне температур.



1 - La_{0,97}ScO_{2,955}; 2 - La_{0,95}ScO_{2,925}; 3 - La_{0,9}ScO_{2,85}

Рисунок 9. Спектры выхода диоксида углерода из гидратированных образцов скандата лантана, синтезированных посредством создания дефицита по катиону лантана

Следует отметить, что термодесорбционные и термогравиметрические эксперименты были выполнены на керамических образцах в виде твердых пластинок. Как показали эксперименты, на образцах, синтезированных посредством акцепторного допирования, имеет место растворение воды и внедрение протонов в решетку скандата лантана, тогда как в случае образцов с дефицитом по катиону интеркаляция протонов практически не наблюдается.

Были проведены термогравиметрические эксперименты с порошкообразными образцами скандата лантана с дефицитом по лантану, исходными и гидратированными при температурах 500 и 350 °C. Установлено, что на исходном порошкообразном образце наблюдается значительная потеря веса в диапазоне температур 200–400 °C. Что же касается гидратированных образцов, то в случае гидратации при 500 °C изменений веса образца обнаружено не было (кривая 3 на рисунке 10), тогда как количество воды в порошках, гидратированных при 350 °C, было примерно таким же, как и в исходных, не гидратированных порошках (кривые 1 и 2 на рисунке 10).

Полученные результаты указывают на то, что при температуре 500 °C равновесная концентрация воды в порошках чрезвычайно мала. Максимальное же содержание воды в порошках наблюдается при температуре гидратации ниже 350 °C. Однако при таких низких температурах насыщение твердых керамических La_{1-x}ScO_{3-δ} должно занимать достаточно много времени.



1 – La_{0.97}ScO_{2.955}, исх.; 2 – La_{0.97}ScO_{2.955}, гидратированный при 350 °C; 3 – La_{0.95}ScO_{2.925}, гидратированный при 500 °C

Рисунок 10. Данные термогравиметрии порошков скандата лантана с дефицитом по лантану

Проводящие свойства скандата лантана

Электрохимическая импедансная спектроскопия является наиболее полезным и информативным методом при исследовании электрофизических свойств ионных проводников. Импедансные спектры твердых электролитов обычно приводят в представлении

Найквиста (действительная и мнимая части импеданса по оси *x* и *y*, соответственно). В этом случае спектры, как правило, состоят из набора полуокружностей, каждая из которых отвечает за процессы, протекающие в объеме зерна, на границах зерен твердого электролита, а также на границах раздела электрод-электролит [13].

В данной работе измерения импеданса были выполнены в специально изготовленной твердотельной электрохимической ячейке с использованием потенциостата/гальваностата P-45X с модулем частотного анализатора FRA-24M в диапазоне частот 500 кГц–0,2 Гц при температурах от комнатной до 650 °C. Измерения проводили на образцах в виде таблеток диаметром 11 мм и толщиной 3 мм, на которые были нанесены электроды из пористой платины.

Импедансные спектры были сняты на образцах следующих составов: La_{0,95}Sr_{0,05}ScO_{2,975}, La_{0,95}Sr_{0,1}ScO_{2,95}, La_{0,95}Ca_{0,05}ScO_{2,975}, La_{0,95}Co_{2,95}, La_{0,95}CcO_{2,95}, La_{0,95}ScO_{2,95}, La_{0,95}ScO_{2,925}, La_{0,95}ScO_{2,95}, B качестве примера на рисунке 11 приведены импедансные кривые в представлении Найквиста для допированного стронцием (x = 0,1) скандата лантана, а также скандата лантана с дефицитом по лантану, снятые при указанных температурах.



Рисунок 11. Кривые Найквиста для скандата лантана, синтезированного методом катионного допирования и созданием дефицита по La

Анализ импедансных спектров показал, что, как в случае образцов, синтезированных посредством акцепторного допирования, так и создания дефицита по лантану, импедансные спектры состоят из двух полуокружностей, одна из которых соответствует объемной проводимости, а другая – проводимости границ зерен.

Обработка импедансных спектров была выполнена с помощью программы ZVIEW. В результате получены температурные зависимости электросопротивлений объема зерен и их границ для всех указанных выше стехиометрий.

На рисунке 12 представлены температурные зависимости удельных электросопротивлений «объема» и границ зерен образцов скандата лантана, допированных стронцием. Сплошными линиями показана аппроксимация экспериментальных данных прямыми, тангенс угла которых характеризует энергию активации проводимости. Из рисунка 12, а видно, что проводимость тела зерен растет с ростом степени катионного допирования во всем исследованном диапазоне температур. Последнее, по-видимому, обусловлено тем, что концентрация вакансий и, как следствие, концентрация носителей заряда растет с ростом степени катионного допирования.

Из рисунка 12, б следует, что проводимость границ зерен практически не зависит от степени катионного допирования. Низкая проводимость границ зерен в данном случае, по-видимому, обусловлена большими корреляционными эффектами на границах зерен.

На рисунке 13 представлены зависимости удельных электросопротивлений «объема» и границ зерен керамических образцов скандата лантана, синтезированных посредством создания дефицита по лантану, от обратной температуры.



1 – допированный Sr (x=0,1); 2 – Sr (x=0,05)

Рисунок 12. Температурные зависимости удельных электросопротивлений объема (а) и границ (б) зерен скандата лантана



1 - La_{0,97}ScO_{3-δ}; 2 - La_{0,95}ScO_{3-δ}; 3 - La_{0,9}ScO_{3-δ}

Рисунок 13. Температурные зависимости электросопротивлений объема (а) и границ (б) зерен керамических образцов La1-xScO3-б Из рисунка 13, а следует, что при невысоких дефицитах по лантану проводимость объема зерен в этих материалах растет с ростом дефицита по лантану. При дефиците по лантану около 10%, наблюдается ухудшение проводимости, что обусловлено, повидимому, структурными изменениями (рисунок 4).

Из рисунка 13, б видно, что у образцов с дефицитом по лантану 10%, как удельное сопротивление, так и энергия активации проводимости границ зерен, больше, чем у образцов с дефицитом по лантану 5%. По-видимому, это обусловлено структурными изменениями, указанными выше.

Рассчитанные значения энергий активаций проводимостей приведены в таблицах 3 и 4.

Таблица 3. Значения энергий активаций проводимостей скандата лантана, синтезированного путем акцепторного допирования

Castan	Е _{акт} , эВ				
COCTAB	объем зерна	границы зерен			
La0,95Sr0,05ScO2,975	0,55	0,99			
La _{0,9} Sr _{0,1} ScO _{2,95}	0,59	0,95			
La0,95Ca0,05ScO2,95	0,74	1,14			
La0,9Ca0,1ScO2,95	0,69	1,10			

Таблица 4. Значения энергий активаций проводимостей скандата лантана, синтезированного путем создания дефицита по катиону лантана

Coorton	E	Еакт, эВ					
COCTAB	объем зерна	границы зерен					
La _{0,97} ScO _{2,955}	1,07	-					
La _{0,95} ScO _{2,925}	1,06	1,13					
La0.9ScO2.85	1,07	1,6					

Из таблицы 3 следует, что энергия активации проводимости, как объема, так и границ зерен скандатов лантана, допированных стронцием ниже, чем при допировании кальцием.

Из таблицы 4 следует, что энергия активации проводимости объема зерен практически не зависит от степени дефицита по лантану.

Заключение

Изучены структура и свойства протонных проводников на основе LaScO₃, синтезированных путем акцепторного допирования и создания дефицита по катиону La. Показано, что количество интеркалированных протонов в решетку оксида растет с ростом степени катионного допирования и выше при допировании стронцием чем кальцием. Замечено, что в образцах скандата лантана с катионной нестехиометрией количество интеркалированных протонов уменьшается с ростом дефицита по лантану, что вероятно обусловлено возможностью связывания кислородных вакансий Vo в комплексы типа $(La_{La}^{"} - V_{O}^{"})'$ и блокированием их участия в процессе растворения воды. Определены энергии активации проводимости объема и границ зерен скандата лантана, синтезированного различными методами. Показано, что проводимость и энергия активации проводимости объема зерен образцов, допированных стронцием, выше, чем при допировании кальцием. Замечено, что энергия активации проводимости образцов с катионной нестехиометрией практически не зависит от дефицита по лантану.

Работа выполнена при финансовой поддержке МОН РК (грант AP05130148).

Литература

- 1. Bishimbaev V.K. Modern development of metal-hydrogen power / V.K. Bishimbaev, K.K. Lepesov // Proceed-ings of NAS RK, physics and mathematics series. 2013. № 3. P. 26–29.
- Iwahara H. High temperature proton conducting solids oxide fuel cells using various fuels / H. Iwahara, H.Uchida, S.Tanaka // J. Appl. Electrochem. – 1986. – Vol. 16. – P. 663–668.
- 3. Reijers R. Literature review on high temperature proton conducting materials / R. Reijers, W. Haije // Energy research Centre of the Netherlands, Dec. 2008.
- Lybye D. Proton and oxide ion conductivity of doped LaScO₃ / D. Lybye, N. Bonanos // Solid State Ionics. 1999. V. 125. P. 339– 344.
- Горелов В.П. Протонные твердые электролиты на основе LaScO₃ / В.П. Горелов, А.Ю. Строева // Электрохимия, 2012. Т. 48. № 10. С. 1044–1056.
- Hatchwell C. The role of dopant concentration, A-site deficiency and processing on the electrical properties of strontium- and titanium-doped lanthanum scandate / C. Hatchwell, N. Bonanos, M. Mogensen // Solid State Ionics. 2004. V. 167. P. 349–354.
- Строева А.Ю. Влияние дефектности подрешетки скандия на ионный и дырочный перенос в протонпрово-дящих оксидах на основе LaScO₃ / А.Ю. Строева, В.П. Горелов, А.В. Кузьмин, В.Б. Выходец, Т.Е. Куренных // Электрохимия, 2011. Т. 47. № 3. С. 1–12.
- Shima D. The influence of cation non-stoichiometry on the properties of undoped and gadolinia-doped barium cerate / D. Shima, S.M. Haile // Solid State Ionics. – 1997. – V. 97. – P. 443–455.
- Kuzmin A.V. Synthesis and characterization of dense proton-conducting La_{1-x}Sr_xScO_{3-α} ceramics / A.V. Kuzmin, A.Y. Stroeva, V.P. Gorelov, Y.V. Novikova, A.S. Lesnichyova, A.S. Farlenkov, A.V. Khodimchuk. // Int. J. Hydr. Energy. – 2019. – V. 44. – P. 1130–1138 [CrossRef].
- 10. Горелов В. П. Протонные твердые электролиты на основе LaScO₃ / В.П. Горелов, А.Ю. Строева. // Электрохимия. 2012. Т. 48. № 10. С. 1044–1056/
- Aksenova T.I. Thermodesorption study of barium and strontium cerates / T.I. Aksenova, I.V. Khromushin, Zh.R. Zhotabaev, K.D. Bukenov, A.K Berdauletov, Z.V Medvedeva. // Solid State Ionics. – 2003. – V. 162–163. – P. 31–36.

- Lesnichyova Alyona. Water Uptake and Transport Properties of La_{1-x}Ca_xScO_{3-α} Proton-Conducting Oxides / Alyona Lesnichyova, Anna Stroeva, Semyon Belyakov, Andrey Farlenkov, Nikita Shevyrev, Maksim Plekhanov, Igor Khromushin, Tatyana Aksenova, Maxim Ananyev and Anton Kuzmin // Materials 2019, V. 12(14), P. 1–13, https://doi.org/10.3390/ma12142219.
- Жуковский В.М. Импедансная спектроскопия твердых электролитических материалов / Жуковский В.М., Бушкова О.В. // Екатеринбург: Изд-во УрГУ, 2000. 35 с.

ЛАНТАН СКАНДАТЫ НЕГІЗІНДЕГІ ПРОТОНДЫ ӨТКІЗГІШТЕРДІҢ ҚАСИЕТТЕРІНЕ АҚАУЛАРДЫҢ ҚАЛЫПТАСУ ТӘСІЛІНІҢ ӘСЕРІ

И.В. Хромушин, Т.И. Аксенова

«Ядролық физика институты» РМК, Алматы, Қазақстан

Акцепторлық қосымшалау және La катион бойынша жетіспеушілік жасау жолымен синтезделген LaScO₃ негізіндегі протонды өткізгіштердің құрылымы мен қасиеттері зерделенді. Оксид торына интеркалибрленген протондардың саны катиондық қосымшалау деңгейінің жоғарылауымен артады және кальциймен қосымшалауға қарағанада стронциймен қосымшалау кезінде жоғары болатыны көрсетілді. Катионды стехиометриялық емес лантан скандаты үлгілерінде лантан бойынша жетіспеушіліктің артуымен интеркалибрленген протондардың саны азаятыны байқалды, бұл V₀ оттегі бос орындарын (La^{*}_{La} – V₀)' типті жиынтыққа байланыстыру мүмкіндігімен және судың еру процесіне олардың қатысуын бұғаттаумен байланысты болуы мүмкін. Әртүрлі әдістермен синтезделген лантан скандаты түйіршіктерінің көлемі мен шектерінің өткізгіштігінің активтену энергиясы анықталды. Кальциймен қосымшалауға қарағанада стронциймен қосымшалауға қарағанада стронциймен қосымшаланған үлгілер түйіршіктері көлемі мен шектерінің өткізгіштігінің активтену энергиясы жоғары екендігі көрсетілді. Катионды стехиометриялық емес үлгілердің өткізгіштігінің активтену энергиясы іс жүзінде катион бойынша жетіспеушіліктен тәуелсіз екені байқалды.

INFLUENCE OF DEFECTS FORMATION WAY ON PROPERTIES OF PROTON CONDUCTORS BASED ON LANTHANUM SCANDATE

I.V. Khromushin, T.I. Aksenova

RSE "Institute of Nuclear Physics", Almaty, Kazakhstan

The structure and properties of proton conductors based on LaScO₃ synthesized by acceptor doping and the creation of a deficiency in La cation were studied. It has been shown that the number of intercalated protons in the oxide lattice increases with an increase in the degree of cationic doping and is higher when doped with strontium than calcium. It has been noted that in lanthanum scandate samples with cationic non-stoichiometry, the number of intercalated protons decreases with increasing lanthanum deficiency, which is probably due to the possibility of binding oxygen vacancies V_0^{\bullet} to $(La_{La}^{\bullet} - V_0^{\bullet})'$ complexes and blocking their participation in the process of water dissolution. The activation energies of the conductivity of the volume and grain boundaries of lanthanum scandate synthesized by various methods are determined. It was shown that the conductivity and activation energy of conductivity of the volume of grains of samples doped with strontium are higher than when doped with calcium. It is noted that the activation energy of conductivity of samples with cationic non-stoichiometry is practically independent of the lanthanum deficiency.

ПРАКТИЧЕСКИЕ СПОСОБЫ ОПРЕДЕЛЕНИЯ ЭНЕРГЕТИЧЕСКИХ ПАРАМЕТРОВ РЕАКТОРНЫХ ИСПЫТАНИЙ В РЕЖИМЕ ИМПУЛЬСНОГО ИЗМЕНЕНИЯ МОЩНОСТИ

¹⁾ Витюк В.А., ¹⁾ Вурим А.Д., ^{1,2)} Витюк Г.А.

 РГП «Национальный ядерный центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан
 Восточно-Казахстанский государственный технический университет им. Д. Серикбаева, Усть-Каменогорск, Казахстан

В статье представлен обзор существующих практических способов определения мощности и энерговыделения в топливе твэлов, испытываемых в исследовательских реакторах. Акцент сделан на подходах, которые могут быть успешно использованы в практике импульсных реакторных испытаний с нестационарным характером изменения мощности. Выполнен сравнительный анализ различных методов, отражены их достоинства и недостатки. Сформулированы рекомендации по применению рассмотренных подходов в практике испытаний в импульсном графитовом реакторе (ИГР), направленных на изучение поведения топлива ядерных энергетических реакторов в переходных и аварийных режимах.

Введение

На сегодняшний день в мире наблюдается достаточно высокий спрос на проведение качественных исследований параметров новых типов реакторного топлива в переходных и аварийных режимах работы в условиях облучения в исследовательских реакторов, на которых могут проводиться такого рода динамические испытания [1–4 и др.], однако, все они обеспечивают возможность испытания сборок, состоящих лишь из нескольких тепловыделяющих элементов (твэлов) [5–8 и др.].

Нейтронно-физические характеристики ИГР [9] обеспечивают возможность исследования поведения тепловыделяющих сборок (ТВС) различных типов реакторов, состоящих из нескольких десятков твэлов, содержащих до 8 кг диоксида урана, в переходных и аварийных режимах работы. На протяжении многих лет на ИГР успешно реализуются экспериментальные программы по исследованиям поведения твэлов и ТВС, результаты которых, в том числе, вошли в международную базу данных американской комиссии по ядерному регулированию [10]. В данный момент исследования сосредоточены на изучении поведения в аварийных режимах эксплуатации ТВС реакторов на быстрых нейтронах с натриевым теплоносителем японской и французской разработки [11-16]. Другие разработчики реакторов также проявляют интерес к реализации подобных экспериментальных программ [17-19].

Исследования поведения твэлов и ТВС в переходных и аварийных режимах работы проводятся в нестационарных условиях импульсного изменения мощности ИГР. В ходе таких импульсов за счет разогрева активной зоны, перемещения стержней, изменения характеристик объекта испытаний и т.д. происходит существенное изменение нейтронного поля самого ИГР, которое определяет параметры облучения испытываемого топлива [20], его энергетические и тепловые характеристики. В этой связи, при подготовке испытаний на первый план выходит задача качественного прогнозирования и обеспечения заданных параметров, в первую очередь мощности и интегрального энерговыделения в испытываемых твэлах. Решение данной задачи осуществляется с использованием двух подходов, которые совместно обеспечивают необходимую точность. Во-первых, это калибровочные эксперименты на реакторе, включающие использование целого ряда методик, позволяющих получить необходимые экспериментальные данные, которые ложатся в основу прогнозирования параметров испытаний твэлов. Во-вторых, расчетные исследования с использованием нейтронно-физических [21] и теплогидравлических моделей, позволяющие осуществить теоретическую проверку реализуемости заданных сценариев испытаний на основе экстраполяции полученных в калибровочных экспериментах данных.

В рамках данной статьи рассмотрены способы определения энергетических параметров реакторных испытаний, которые применяются в практике динамических испытаний твэлов и ТВС.

1. Общие подходы к определению энергетических параметров

Энерговыделение в топливе модельных твэлов (будь то одиночные модельные твэлы или твэлы в составе ТВС) является важнейшим из технологических параметров. Практические способы определения энерговыделения в топливе ограничены следующими основными методами:

– балансовыми тепловыми методами, среди которых метод стационарного определения энерговыделения обладает наибольшей точностью, так как в установившемся режиме (стационарном) основными параметрами, влияющими на точность определения энерговыделения являются температура и давление теплоносителя, что в сочетании со специальными мерами предотвращения тепловых утечек (создание эффективной теплоизоляции) позволяет достичь результата по определению энерговыделения с погрешностью не более 5...6%;

– для случая процессов с неустановившимся режимом теплообмена возможно применение методов квазирегулярного теплообмена. Погрешность этого метода превышает погрешность стационарного балансового метода, так как его практическая реализация связана с необходимостью многократного измерения температуры и давления теплоносителя в строго фиксированные моменты времени (третий параметр), а математическая обработка результатов описывается более сложными аналитическими соотношениями. Как и в предыдущем случае, этот метод имеет интегральный характер, и, для переноса результата на конкретный объем топлива, необходимо знание пространственного распределения энерговыделения в объекте испытаний;

метод прямого измерения энерговыделения в выделенной из объекта испытаний части топлива спектрометрическим или радиохимическим методом. Погрешность определения энерговыделения в конкретной части топлива по оценкам не превышает 10%. Погрешность определения энерговыделения во всем объекте испытания зависит от корректности переноса результатов точечного определения энерговыделения на весь объект и связана с погрешностью определения пространственного распределения энергоовыделения в объекте (в общем случае - от погрешности определения аксиального и радиального профилей энерговыделения);

метод косвенного определения энерговыделения, суть которого состоит в определении энерговыделения не в самом объекте испытаний, а в некоем детекторе, для которого установлен характер связи с объектом испытаний. В общем случае погрешность такого определения энерговыделения в объекте испытаний будет складываться из погрешности собственно спектрометрических и радиохимических методов, погрешности переноса результата на объект испытаний (погрешности коэффициента связи между объектом и детектором) и погрешности определения профиля энерговыделения в объекте испытаний;

 метод, основанный на установлении связи между энергетическими параметрами топлива и результатами прямого определения значения нейтронного потока в месте расположения твэлов и ТВС.

Все эти методы можно условно разделить на доэкспериментальные и послеэкспериментальные. Ниже представлено их описание и область применения.

2. Послеэкспериментальные методы

Широко распространен в практике внутриреакторных исследований **гамма-спектрометрический метод** измерения энерговыделения в испытываемом топливе [22–27]. В его основе лежат измерения распределения интенсивности гамма-излучения короткоживущих продуктов деления, таких как ¹⁴⁰La, ¹³¹I, ⁹⁵Zr и т.д. в образцах топлива. При этом в качестве объекта исследований может использоваться как выделенная из объекта испытаний часть топлива, так и урансодержащий индикатор, калиброванный на содержание ²³⁵U и устанавливаемый как можно ближе к испытываемой ТВС. Результаты определения абсолютного числа делений в индикаторах переносятся на ТВС с учетом пространственной корреляции между потоком тепловых нейтронов и удельным энерговыделением по объему топлива.

Определение всех составляющих и суммарной погрешности метода для различных случаев измерений (отличающихся по удельной мощности энерговыделения в топливе, по уровням остаточной активности на момент измерения, по определяемым изотопам и гамма-линиям) с учетом погрешности справочных величин и паспортных характеристик твэлов, является одной из задач корректного расчета энерговыделения. Общая погрешность реализации заданного энерговыделения, даже при идеально работающей остальной методике (процедуре) эксперимента, не может быть меньше суммарной погрешности метода спектрометрического определения энерговыделения.

В практике подготовки и проведения испытаний на реакторе ИГР для определения энерговыделения в испытываемом топливе в ряде случаев используется подход, состоящий в определении абсолютного числа делений в детекторах энерговыделения или непосредственно в топливе модельных твэлов и ТВС [28].

В первом случае в качестве индикатора используется урансодержащий стержень или таблетка, калиброванная на содержание ²³⁵U. Индикатор помещается в тонкостенную гильзу и устанавливается в ампульном устройстве на уровне центра активной зоны и активной части топлива. Определение абсолютного числа делений в индикаторе производится путем измерения распределения интенсивности гамма-излучения изотопа ¹⁴⁰La, образовавшегося из материнского изотопа ¹⁴⁰Ba. Результаты определения абсолютного числа делений в индикаторах переносятся на модельный твэл с учетом пространственной корреляции между потоком тепловых нейтронов и удельным энерговыделением по объему топлива.

Спектрометрические измерения топливных таблеток (после извлечения из модельного твэла) проводятся с целью уточнения и дополнения данных, полученных с помощью индикаторов. Число делений в каждой топливной таблетке определяется по изотопам ¹⁴⁰La и ⁹⁵Zr по методике, разработанной для специфических условий ампульных испытаний.

Теоретически полная погрешность определения удельного энерговыделения составляет ~11% для топливных таблеток и не превышает 8% для мониторов энерговыделения при доверительной вероятности p=0,95.

К достоинствам данного метода можно отнести длительный опыт применения на ИГР, отработанность всех процедур его реализации, осуществление измерений непосредственно в исследуемом топливе и возможность определения объемного распределения энерговыделения. Вместе с тем, существует ограничение, связанное с довольно низкой оперативностью метода. В текущих условиях применения время от непосредственно облучения топлива до получения результатов составляет около двух недель. Помимо этого, в случае проведения измерений не в самом объекте испытаний, а в детекторе энерговыделения, необходимо предварительно установить связь параметров топлива с параметрами детектора и параметрами реактора ИГР.

Нейтронно-активационный метод измерений основан на установлении связи между энергетическими параметрами топлива и результатами прямого определения значения нейтронного потока в месте расположения твэлов и ТВС. Метод заключается в облучении нейтронно-активационного детектора в нейтронном поле, измерении наведённой активности по избранной реакции, расчёте активационных интегралов (скоростей реакций) и последующем определении характеристик нейтронного поля [29–31]. Такая методика позволила определить энерговыделение в импульсе с погрешностью 12%.

Достоинством нейтронно-активационного метода при испытаниях в ИГР является достаточно высокая, в сравнении со спектрометрическим методом, оперативность. Активационный детектор может быть извлечен из объекта испытаний практически сразу после их завершения и подвергнут измерениям. Вместе с тем, при применении активационных детекторов сохраняется необходимость предварительного установления связи между характеристиками нейтронного поля в районе установки детектора и в испытываемом топливе, которая может быть непостоянна для некоторых режимов испытаний, например, для режимов с изменением конфигурации самого объекта испытаний.

Описанные выше методы определения энерговыделения в пространственных конструкциях с использованием индикаторов применимы до той поры, пока эти конструкции остаются в исходной форме. В случае изменения конфигурации самих топливных элементов или окружающих конструкций будет иметь место перераспределение материалов, влияющих на параметры нейтронного потока в ТВС, следовательно, начиная с этого момента, «отклик» индикаторов, основанный на ранее установленной связи с параметрами ТВС, будет включать в себя некорректную информацию.

Вместе с тем, совместное использование спектрометрических и активационных детекторов при относительно небольших затратах ресурсов позволяет получить достаточно представительный набор данных, которые дают информацию о пространственном распределении энерговыделения в ТВС, что является важным условием качественной подготовки и проведения испытаний.

Для определения энерговыделения в облученном топливе применяется также радиохимический метод определения содержания продуктов деления в образцах топлива по результатам проведения послеэкспериментального разрушающего анализа [32]. Метод характеризуется высокой точностью, однако его применение на практике связано с необходимостью использования дорогостоящего оборудовании и разрушения, по крайней мере, части твэла. В настоящее время на реакторе ИГР не используется.

3. Методы определения энергетических параметров в ходе эксперимента

К таким методам можно отнести балансовые методы, которые, в принципе, позволяют в режиме онлайн получать данные по температуре топлива, теплоносителя и других элементов объекта испытаний, переводя эти данные в значения энергетических характеристик испытываемого топлива. Характерным примером применения **методов теплового баланса** во внутриреакторных испытаниях может служить методика определения энерговыделения в исследуемом топливе, которая используется для получения информации о текущих параметрах испытаний в петлевых экспериментальных устройствах реактора BR-2 [33], а также для дальнейшего обеспечения предварительно заданных параметров облучения.

Для этого в непрерывном режиме определяются величина изменения энтальпии теплоносителя облучательного устройства в сочетании с информацией, полученной по результатам предварительных расчетов, а также по результатам предварительных экспериментов с макетом устройства (определение утечек тепла, количества теплоты на нагрев конструкционных элементов, пространственного распределения энерговыделения в топливе).

Общая погрешность определения мощности топлива в таких экспериментах оценивается в диапазоне 4–6% [34].

В рамках серии испытаний топлива на реакторе BR-2 было выполнено сравнение результатов определения линейной мощности твэлов различными способами: гамма-спектрометрическим и балансовым методом [35, 36]. Погрешность гамма-спектрометрического метода в исследованиях оценивается на уровне 2,7%, погрешность метода теплового баланса – на уровне 4,2%.

Подобный подход при определении энергетических параметров твэлов применялся и в испытаниях на исследовательском комплексе SCARABEE [37]. Энерговыделение в твэлах определяется на основании данных о мощности реактора и коэффициенте связи между испытательной ячейкой и реактором. Этот коэффициент связи определялся двумя способами. Во-первых, путем определения теплового баланса испытательного канала при стационарных режимах каждой загружаемой сборки с учетом тепловых потерь. Статистический анализ полученных результатов позволяет найти погрешность, составляющую 4,5–8,4% с доверительной вероятностью 95%. Вовторых, путем непосредственного определения числа делений в топливных таблетках при помощи детекторов, введенных в активную зону. Оба способа дают результаты, согласующиеся с погрешностью ~7% [38].

Методика расчета тепловой мощности твэлов и экспериментальных ТВС на основе метода теплового баланса используются и при организации испытаний топлива в петлевых каналах реактора МИР.М1 [39].

Это, во-первых, комплекс методик определения энерговыделения в экспериментальных ТВС на стационарном режиме работы [40–42], и, во-вторых, методы определения линейной мощности и энтальпии топлива в экспериментах с реализацией импульса [43, 44].

Существует еще целый ряд примеров применения метода теплового баланса для определения энергетических характеристик топлива в испытаниях на петлевых установках существующих исследовательских реакторов (Halden [45], FR-2 [46, 47], HFR [48], TREAT [49], NSRR [50]). Общим для всех рассмотренных случаев является необходимость обеспечения качественной регистрации теплофизических параметров экспериментальных устройств, определения утечек тепла, количества теплоты, затраченной на нагрев конструкционных элементов, а также пространственного распределения энерговыделения в топливе. Для определения этих параметров, в свою очередь, может потребоваться проведение комплекса предварительных расчетов и вспомогательных экспериментов. Погрешность вычислений при использовании метода теплового баланса варьируется в диапазоне 3-18% в зависимости от определяемого параметра (средняя линейная мощность, максимальная линейная мощность, энерговыделение и т.д.), состава средств измерений и режима испытаний (стационарный, импульсный).

На реакторе ИГР используются адаптированные под импульсный характер изменения мощности модификации балансовых методов определения мощности и энерговыделения в испытываемых твэлах [51]. Практическая отработка данных методов показала возможность их применения и обеспечения приемлемой точности. Анализ полученных результатов и сравнение с результатами применения спектрометрического метода указывает на отсутствие противоречий между полученными по независимым методикам результатами. Относительная погрешность определения мощности твэлов в серии экспериментов по отработке данной методики не превышала 7% [52].

Основными достоинствами данного метода являются его оперативность и возможность применения в широком диапазоне уровней энерговыделения. При этом обеспечивается достаточно высокая точность определения связи энергетических параметров испытываемого топлива и реактора ИГР. В случае использования малоинерционных и теплостойких детекторов температуры может быть получена непрерывная зависимость в достаточно широком диапазоне реализуемого в топливе энерговыделения, на основании которой, теоретически, может осуществляться регулирование или корректировка диаграммы изменения мощности ИГР в процессе испытаний. Фактически ширина диапазона применения метода ограничена лишь диапазоном измерений температурного детектора и необходимостью обеспечения его целостности при высоких тепловых нагрузках. Как правило, в качестве детекторов температуры объекта испытаний в ИГР применяются термоэлектрические преобразователи, которые имеют достаточно широкий диапазон измерений, совпадающий или достаточно приближенный к требуемыми к реализации тепловым параметрам в самом топливе или в окружающих его конструкциях. Соответственно обеспечивается и устойчивость таких детекторов к тепловым нагрузкам, соответствующим верхнему пределу диапазона измерений. Единственным фактором, который характерен и напрямую связан с их использованием в условиях высоких гамма-полей реактора ИГР, и который следует учитывать в реакторных испытаниях, является радиационный разогрев горячих спаев детекторов, который может оказать влияние на точность применения метода, особенно в режимах с низким уровнем разогрева термометрированных конструкций и высоком гамма-излучении реактора.

Заключение

В рамках процедуры подготовки и проведения испытаний твэлов и ТВС на реакторе ИГР применятся практически весь спектр известных способов определения энергетических параметров испытываемого топлива. Разные методы характеризуются различным набором достоинств и недостатков, которые обеспечивают или ограничивают возможность их применения в тех или иных условиях. Как правило, данные методы используются совместно и результаты применения одних дополняют недостающую информацию, полученную при применении других.

Основным недостатком применения послеэкспериментальных методов определения интегрального энерговыделения в испытуемом топливе является отсутствие возможности получения информации об энергетических параметрах ТВС непосредственно в процессе испытаний. Кроме того, существует еще одна проблема их применения в кратковременных импульсных экспериментах. В результате послеэкспериментальных исследований определяется количество делений за весь период пребывания топлива в реакторе. Исследования зависимости энерговыделения в топливе от времени пребывания испытываемых образцов в реакторе, проведенные на установке NSRR показали, что при проведении кратковременных импульсных испытаний топлива при общей энергии, выделяющейся на один акт деления 186 МэВ, только 175 МэВ вкладываются в топливо непосредственно в процессе реализации диаграммы энерговыделения, а еще 11 МэВ поступает с запаздывающим бета- и гамма-излучением [53]. Влияние этого факта необходимо учитывать, особенно при определении пороговых разрушающих величин энерговыделения в топливе.

Применение балансовых методов и их модификаций позволяет определять параметры импульсных экспериментов на уровнях энерговыделения в реакторе, соответствующих области исследовательских пусков. Использование малоинерционных и теплостойких детекторов температуры может обеспечить возможность получения непрерывной зависимости в достаточно широком диапазоне реализуемого в топливе энерговыделения, на основании которой может осуществляться регулирование или корректировка диаграммы изменения мощности ИГР непосредственно в процессе испытаний. Основным ограничением является работоспособность применяемых детекторов в условиях высоких тепловых и радиационных нагрузок и диапазон их измерений.

Данная работа выполнена в рамках научно-технической программы «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» республиканской бюджетной программы «Развитие атомных и энергетических проектов» при поддержке Министерства энергетики Республики Казахстан.

Литература

- Ishikawa M., Inabe T. The Nuclear Safety Research Reactor (NSRR) in Japan // Advances in Nuclear Science and Technology. Boston. – 1979. – Vol.11. – pp. 285–334.
- Design Summery Report On the Transient Reactor Test Facility (TREAT): AEC R&D Report / Argonne National Laboratory; Freund G.A., MacFarlane D.R., Elias P., Geier J.D., Bolan J.F. – 1960, – pp. 85–86.
- Dragunov Yu., Lopatkin A. et al. Experimental Potentialities of the MBIR Reactor // International Atomic Energy Agency (IAEA): IAEA. – 2015.
- 4. CABRI project 1973-1988. Test facility, results and achievements CEA/IPSN/DERS nº 01/89. 1989.
- 5. Андреев В.И., Колядин В.И., Яковлев В.В. Экспериментальное исследование поведения твэлов водо-водяных реакторов при нестационарных режимах // Атомная техника за рубежом. 1988. №3. С. 3–10.
- 6. Косилов А.Н. и др. Техника экспериментального исследования твэлов в нестационарных режимах // Атомная техника за рубежом. 1981. №9. С. 3–8.
- 7. Бурукин В.П. и др. Реакторные установки для испытаний твэлов и ТВС в аварийных и переходных режимах эксплуатации // Атомная техника за рубежом. 1988. №6. С. 7–15.
- 8. Бурукин А.В., Грачев А.Ф., Калыгин В.В. и др. Испытания в реакторе МИР твэлов ВВЭР в режимах с циклическим изменением // Атомная энергия. 2008. Т. 104, № 2. С. 108–113.
- 9. Курчатов И.В., Фейнберг С.М. и др. ИГР Импульсный Графитовый Реактор // Атомная Энергия. 1964. Т. 17, изд. 6. 1964. С. 463–474.
- Data Base on the Behavior of High Burnup Fuel Rods with Zr-1%Nb Cladding and UO₂ Fuel (VVER Type) under Reactivity Accident Conditions: International Agreement Report (NUREG/IA-0156) / Office of Nuclear Regulatory Research U.S. Nuclear Regulatory Commission. – July, 1999.
- 11. Konishi, K. et al. The Result of a wall failure in-pile experiment under the EAGLE project // Nucl. Eng. Des. 2007. 237(22). pp. 2165–2174.
- 12. Kamiyama, K. et al. Experimental studies on the upward fuel-discharge for elimination of severe recriticality during coredisruptive accidents in sodium-cooled fast reactors / Journ. Nucl. Sc. Technol. – 2014. – 51(9). – pp. 1114–1124.
- Serre F., Payot F., Suteau C., Trotignon L., Batyrbekov E., Vurim A., Pakhnits A., Vityuk V., Kubo S., Katoh A., Tobita Y., Kamyama K., Matsuba K., Toyooka J. R&D and experimental programs for mitigating severe accidents consequences in GENIV SFRS and the ASTRID technology demonstrator // Вестник НЯЦ РК. – 2016. – Вып. 1. – С. 25–30.
- 14. Serre F., Payot F., Suteau C., Trotignon L., Batyrbekov E., Vurim A., Pakhnits A., Vityuk V., Kubo S., Katoh A., Tobita Y., Kamiyama K., Matsuba K., Toyooka J. R&D and Experimental Programs to support the ASTRID Core Assessment in Severe Accidents Conditions // Proceedings of International Congress on Advances in Nuclear Power Plants (ICAPP), 2016, San Francisco (CA, USA), April 17–20. – 2016. – Vol. 3. pp. 2173–2182.
- 15. Kubo S., Tobita Y., Sato I., Kotake S., Endo H., Koyama K., Konishi K., Kamiyama K., Matsuba K., Toyooka J., Zuev V.A., Pakhnits A.V., Vityuk V.A., Gaidaichuk V.A., Vurim A.D., Kolodeshnikov A.A., Vassiliev Y.S. Main outcomes and future plan of the EAGLE project // Вестник НЯЦ РК. – 2016. – Вып. 1. – С. 13–18.
- 16. Витюк В.А., Вурим А.Д., Котов В.М., Витюк Г.А., Serre F., Payot F., Suteau C., Trotignon L. Разработка модельной ТВС для исследования аварийной ситуации с мгновенной блокировкой потока теплоносителя в реакторе на быстрых нейтронах // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – Вып.3. – С. 93 – 98.
- Витюк Г.А., Вурим А.Д., Котов В.М., Витюк В.А., Жанболатов О.М. Расчетные исследования в поддержку внутриреакторных испытаний твэлов реакторов на быстрых нейтронах // Вестник НЯЦ РК. – 2017. – Вып. 3. – С. 24 – 30.
- 18. Витюк, В.А. Реактор MYRRHA // Человек. Энергия. Атом. Научно-публицистический журнал. 2015. No2(24). С. 31.
- 19. Вурим А.Д., Жданов В.С., Зверев В.В., Пивоваров О.С., Кулинич Ю.А. Результаты испытаний модельных твэлов реактора типа БРЕСТ-300 в реакторе ИГР. Вестник НЯЦ РК, выпуск 1, январь 2000, с. 25–30.
- 20. Котов В.М., Курпешева А.М., Иркимбеков Р.А. Расчет характеристик ИГР // Атомная энергия. 2011. Т.111, Вып. 2. С. 116–118.
- 21. Вурим А.Д., Котов В.М., Иркимбеков Р.А., Жагипарова Л.К., Байгожина А.А. Компьютерная модель реактора ИГР для стационарных нейтронно-физических расчетов. А.с. №2738 РК, 27.12.2016.
- 22. L. Borms, Y. Parthoens and A. Gys, GERONIMO Third campaign: gamma spectroscopy PIE after ramp test on fuel segments GZR02, GZL33, GZL32 and GZR03 [Tekct] / SCK•CEN-R-3783, 2004.

- Nam, C. A statistical approach to predict the failure enthalpy and reliability of irradiated PWR fuel rods during reactivityinitiated accidents [Teκct] / C.A. Nam, Y.H. Jeong, Y.H. Jung // Nuclear Technology/ – 2001. Vol. 136. – pp. 158–168.
- 24. Nakamura, T. Irradiated Fuel Behavior under Power Oscillation Conditions [Текст] / Takehiko Nakamura [et al.] // Journal of Nuclear Science and Technology. 2003. vol. 40. no. 5. pp. 325–333.
- 25. T. Fuketa [et al.], New Results from the NSRR Experiments with High Burnup Fuel [Tekcr] / US Nuclear Regulatory Commission. Washington DC, USA, 1995. NUREG/CP-0149.
- A study on Gap Heat Transfer of LWR Fuel Rods under Reactivity Initiated Accident Conditions [Tekct] / JAERI-M. 1984. no. 84–063.
- 27. Sasajuma, H. Behavior of Irradiated ATR/MOX Fuel under Reactivity-initiated Accidents Conditions [Текст] / H. Sasajuma [et al.] // Journal of Nuclear Science and Technology. 2000. vol. 37(5). pp. 455–464.
- 28. Определение энерговыделения в топливных детекторах гамма-спектрометрическим методом при проведении испытаний на реакторе ИГР [Текст] : методические указания / ДГП ИАЭ РГП НЯЦ РК; разраб.: М. О. Токтаганов, Ю. А. Попов [и др.]. – Курчатов, 2001. – 16 с. – АК.65000.00.728 МУ. – инв. № К-38051.
- 29. Крамер-Агеев, Е.А. Активационные методы спектрометрии нейтронов [Текст] / В.С. Трошин, Е.Г. Тихонов ; М. : Атомиздат, 1976. – 232 с.
- Мительман, М.Г., Детекторы для внутриреакторных измерений энерговыделения [Текст] / М.Г. Мительман, Б.Г. Дубовский, В.Ф. Любченко, Н.Д. Розенблюм ; М. : Атомиздат, 1977. – 151 с.
- MacDonald, P. Assessment of light-water reactor fuel damage during a reactivity-initiated accident [Teκcr] / P. MacDonald [et al.] // Nuclear Safety. 1980. vol. 21(5). pp. 582–602.
- 32. De Raedt, C Assessment of the Fission Power Level in Fuel Rods Irradiated in the High Flux Materials Testing Reactor BR2 with the Aid of Fluence Dosimetry and Comparison with Other Methods [Электронный ресурс] / C. De Raedt [et al.] // Reactor Dosimetry: Radiation Metrology and Assessment. 2001. URL: http://www.astm.org/DIGITAL_LIBRARY/STP/SOURCE_PAGES/STP1398_foreword.pdf.
- L. Vermeeren and J. Dekeyser. Fuel Irradiation Testing Technology at SCK SEN: Experience and Developments [Электронный pecypc] // Post-Irradiation Examination and In-pile Measurement Techniques for Water Reactor Fuels. Vienna, 2009. IAEA-TECDOC-CD-1635. pp 181–195.
- 34. L. Vermeeren [et al], Qualification of the on-line power determination of fuel elements in irradiation devices in the BR2 reactor [Τεκcτ]: Scientific Report / Belgian Nuclear Research Centre. Mol, Belgium, 2005. NT.57 /D089023/01/LV.
- Бекмагамбетова Б.Е., Вурим А.Д., Иркимбеков Р.А., Сураев А.С. Динамика температурного поля реактора ИГР // Вестник НЯЦ РК. – 2018. – Вып. 1. С. 25–30.
- M. Verwerft [et al.], OMICO [Текст]: Final Report of 5th EURATOM Framework Programme Contract / Belgian Nuclear Research Centre. – Mol, Belgium, 2007. – FIKSCT-2001-00141.
- 37. Bailly, J [et al.], Presentation of the SCARABEE programme [Текст]: Presentation / Safety Working Group of the Coordinating Committee for Fast Reactors. Brussels, 1973.
- 38. Бэйллию, Дж. Исследовательский комплекс SCARABEE: Основные характеристики и программа экспериментов [Текст] / Дж. Бэйллию, А. Таттегрейн, Ж. Саруль. // Атомная техника за рубежом. 1981. №7. С. 24–32.
- 39. Ижутов, А.Л. Разработка и усовершенствование методик определения тепловой мощности и выгорания топлива в исследовательском реакторе МИР.М1: автореф. дис. канд. техн. наук: 05.14.03 / Ижутов Алексей Леонидович. – Димитровград, 2008. – 25 с.
- Методика расчета энерговыделения и выгорания топлива в каналах реактора МИР.М1 [Текст]: методические указания / НИИАР; разраб.: А.Л. Ижутов, Ю.А. Кушнир. – Димитровград, 1994 – Рег. №74–94 ЦСМ. – 0229804912.
- Методика расчета тепловой мощности твэлов в экспериментальных каналах водяных петель реактора МИР.М1 [Текст]: методические указания / НИИАР; разраб.: А.Л. Ижутов, Н.П. Матвеев, В.А. Овчинников. – Димитровград, 1995. – Рег. №1–95. – 0229804912.
- Методика определения суммарной мощности твэлов при испытаниях в ПУ реактора МИР [Текст] : методические указания / НИИАР. – Димитровград, 1998.
- 43. Алексеев, А.В. Методы испытаний в реакторе МИР топлива ВВЭР при переходных и аварийных режимах [Текст] / А.В. Алексеев [и др.] // Известия высших учебных заведений. Ядерная энергетика. 2007. №3. Вып. 1. С. 83–91.
- 44. Алексеев, А.В. Испытания в реакторе МИР твэлов ВВЭР-1000 в режиме аварии с вводом положительной реактивности [Текст]: автореф. дис. канд. техн. наук: 05.14.03 / Алексеев Александр Вениаминович. – Димитровград, 2011. – 24 с.
- 45. Wiesenack, W. Irradiation Test of Mox Fuel in the Halden Reactor and the Analysis of Measured Data With the Fuel Performance Code COSMOS [Tekct] / Wolfgang Wiesenack, Byung-Ho Lee, Dong-Seong Sohn // Nuclear Engineering and Technology. – 2005. – vol.37(4). – pp. 317–326.
- Karb, E.H. In-pile Tests at Karlsruhe of LWR Fuel-Rod Behavior During the Hetup Phase of a LOCA [Tekct] / E.H. Karb // Nuclear Safety. – 1980. – vol. 21(1). pp. 26–37.
- 47. K. Reichardt, W. Krug, J. Seferiadis, Irradiation Tests on Fuel Rods and Plates at the FRJ-2 Research Reactor [Текст] / In Proceedings of symposium Multipurpose Research Reactor. Julich GmbH, Julich, FRG., 1988. p. 211–213.
- High flux reactor (HFR) Petten [Teker]: Characteristics of the installation and the irradiation facilities / European Communities-Joint Research Centre. – 2005.
- D.C. Crawford, R.W. Swanson, A.E. Wright, R.E. Holtz, RIA Testing Capability of the Transient Reactor Test Facility [Tekct]: Report of Argonne National Laboratory. – XA9953250, p. 99–109.
- 50. Fuketa, T. Behavior of high burn-up PWR fuels during simulated reactivity-initiated accident conditions [Текст] / T. Fuketa [et al.] // TopFuel–2006. European Nuclear Society, Salamanca, Spain. 2006. pp. 279–283.

- Vityuk V., Vurim A. Method for determining the energy parameters in pulse reactor experiments // Annals of Nuclear Energy. 2019. – Vol. 127. – pp. 196–203.
- 52. Vityuk V.A., Vurim A.D., Kotov V.M., Pakhnits A.V. Determination of the parameters for fuel assembly tests in a pulsed graphite reactor // Atomic Energy. 2016. Vol. 120, No. 5. pp. 323–327.
- 53. Ohnishi, N Evaluation of Effective Energy Deposition in Test Fuel during Power Burst Experiment in NSRR [Teκcr] / Nobuaki Ohnishi, Teruo Inabe // Journal of Nuclear Science and Technology. -1982. vol. 19(7). pp. 528-542.

ҚУАТТЫ ИМПУЛЬСТІК ӨЛШЕУ РЕЖИМІНДЕ РЕАКТОРЛЫҚ СЫНАҚТАРДЫҢ ЭНЕРГЕТИКАЛЫҚ ПАРАМЕТРЛЕРІН АНЫҚАУДЫҢ ТӘЖІРИБЕЛІК ӘДІСТЕРІ

¹⁾ В.А. Витюк, ¹⁾ А.Д. Вурим, ^{1,2)} Г.А. Витюк

¹⁾ «Қазақстан Республикасы Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Курчатов, Қазақстан ²⁾ Д. Серікбаев атындағы Шығыс Қазақстан мемлекеттік техникалық университеті, Өскемен, Қазақстан

Мақалада зерттеу реакторларында сыналған отындары твэлдерінң қуат пен энергия шығаруын анықтайтын тәжірибелік әдістерге шолу берілген. Қуат өзгерісінің тұрақсыз сипаты бар импульсті реакторлық сынақтар тәжірибесінде сәтті қолдануға болатын тәсілдерге баса назар аударылды. Әр түрлі әдістерге салыстырмалы талдау жасалады, олардың артықшылықтары мен кемшіліктері көрсетіледі. Өтпелі және апаттық жағдайдағы ядролық энергетикалық реакторлар отынының әрекетін зерделеуге бағытталған импульсті графитті реакторда (ИГР) сынау тәжірибесінде қарастырылған тәсілдерді қолдану бойынша ұсыныстар жасалады.

PRACTICAL METHODS FOR DETERMINING THE ENERGY PARAMETERS OF REACTOR TESTS IN THE PULSE POWER MODE

¹⁾ V.A. Vityuk, ¹⁾ A.D. Vurim, ^{1,2)} G.A. Vityuk

¹⁾ RSE "National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan", Kurchatov, Kazakhstan ²⁾ D. Serikbayev East Kazakhstan Technical University, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

The article provides an overview of existing practical methods for determining the power and energy release in fuel of fuel rods tested in research reactors. Emphasis is placed on approaches that can be successfully used in the practice of pulsed reactor tests with the unsteady character of power changes. A comparative analysis of various methods is carried out, their advantages and disadvantages are reflected. Recommendations are formulated on the application of the considered approaches in the practice of testing in a pulsed graphite reactor (IGR), aimed at studying the behavior of the fuel of nuclear power reactors in transient and accident conditions.

СОДЕРЖАНИЕ РАДИОНУКЛИДОВ В ГРИБАХ В ЗОНЕ ВЛИЯНИЯ СЕМИПАЛАТИНСКОГО ИСПЫТАТЕЛЬНОГО ПОЛИГОНА

¹⁾ Шевченко Ю.С., ¹⁾ Ларионова Н.В., ²⁾ Полевик В.В., ¹⁾ Топорова А.В., ¹⁾ Айдарханов А.О.

¹⁾ Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан ²⁾ Государственный университет имени Шакарима, Семей, Казахстан

В статье представлены результаты исследования уровней и параметров накопления естественных (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th) и искусственных (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) радионуклидов грибами на территории, прилегающей к Семипалатинскому испытательному полигону (СИП), в зоне прохождения следа радиоактивных выпадений от первого ядерного испытания (29.08.49 г.). Установлено, что в целом, ни одно из полученных значений удельной активности радионуклидов в грибах не превышает допустимый уровень. Основной вклад в суммарную дозу внутреннего облучения от перорального поступления радионуклидов при потреблении грибов на исследуемой территории вносит доза от естественных радионуклидов.

Ключевые слова: радиоэкология, Семипалатинский испытательный полигон (СИП), естественные радионуклиды (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th), искусственные радионуклиды (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu), грибы, доза.

Введение

В период проведения атмосферных ядерных испытаний на Семипалатинском испытательном полигоне (СИП) радиоактивному воздействию неоднократно подвергались и прилегающие к нему территории. Так, радиоактивное облако от первого ядерного испытания (29.08.49 г.) прошло в непосредственной близости от населенных пунктов Черемушки, Мостик, Долонь, Канонерка, расположенных на территории ленточного соснового бора Прииртышья (рисунок 1).

С точки зрения радиационного загрязнения одним из наиболее важных компонентов лесной экосистемы являются шляпочные грибы. Во-первых, грибы, несомненно, представляют научный интерес с точки зрения изучения основных закономерностей и динамики накопления радионуклидов, так как, являясь симбиотрофами, отличаются по потребности в основных элементах питания, и, как следствие, по величине накопления радиоактивных веществ. Высокие уровни накопления грибами радионуклидов неоднократно отмечались многими исследователями [1–5]. Во-вторых, известно, что грибы, как традиционные продукты питания, способны вносить существенный вклад в дозу внутреннего облучения [6], что в свою очередь, служит еще одной причиной, по которой необходимо их изучение с точки зрения радиационной безопасности.



Рисунок 1. Исследуемая территория









Russula cyanoxantha





Hygrophopsis aurantiaca



Lactarius piperatus

Agaricus camprester Рисунок 2. Объекты исследования

Tricholoma populinum

Целью настоящего исследования было установить содержание естественных (40 K, 226 Ra, 232 Th) и искусственных (241 Am, 137 Cs, 90 Sr, $^{239+240}$ Pu) радионуклидов в шляпочных грибах на территории, прилегающей к СИП, и выполнить оценку доз на население при их потреблении.

Материалы и методы исследования

Участки для проведения исследований были выбраны на основании имеющегося картографического материала, а также по результатам полевых измерений радиационных параметров – плотности потока β-частиц и мощности эквивалентной дозы (МЭД). Всего выбрано 16 участков (рисунок 1). Объектами исследования стали маслята (Suillus granulatus), сыроежки (Russula cyanoxantha), лисички (Hygrophopsis aurantiaca), грузди (Lactarius piperatus), шампиньоны (Agaricus camprester), песочники (Tricholoma populinum) (рисунок 2). Отбор грибов производился с площади до 10 кв. м. Сопряженно с грибами отобраны смешанные образцы почвы (верхний слой 5 см).Пробы грибов промывались и ополаскивались дистиллированной водой 2-3 раза, подвергались грубому измельчению при помощи ножа, затем просушивались в сушильном шкафу при температуре 90 °С до постоянной массы пробы. Далее проводилось измельчение при помощи лабораторной мельницы, с последующим термическим концентрированием (обугливание, озоление) проб. Сухой остаток обугливался в муфельной печи или путем прокаливания на электроплитах в вытяжном шкафу, не допуская воспламенения образца, до прекращения выделения дыма и получения чёрного остатка. Далее пробы охлаждались, растирались и переносились в фарфоровые чашки для последующего озоления. Температура озоления для дальнейшего определения ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th, ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am составляла 400 °C, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – 500 °C. Готовая зола просеивалась через сито для удаления примесей, остывший зольный остаток взвешивался, определялся коэффициент озоления.

Пробы почвы высушивались до воздушно-сухого состояния в сушильных шкафах при температуре (105±2) °С. После удаления из пробы неразложившихся корней и остатков растений и т.д. проба взвешивалась. Затем сухую пробу просеивали через сито с диаметром отверстий 2 мм. Фракцию пробы с диаметром частиц 2 мм собирали отдельно в полиэтиленовый пакет, взвешивали. Фракцию пробы менее 2 мм рассыпали на листе крафт-бумаги, тщательно перемешивали 6–7 раз с угла на угол, распределяли ровным слоем толщиной (0,5–1,0 см) в виде квадрата или прямоугольника. Методом квадратирования отбиралась навеска пробы.

Анализы по измерению удельной активности радионуклидов в пробах почвы и растений проводили в соответствии со стандартизованными методическими указаниями на поверенном оборудовании. Определение удельной активности радионуклидов ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th, ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am проводили на гамма-спектрометре *Canberra GX-2020* [7], ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – радиохимическим выделением с последующим измерением на бета-спектромертре *TRI-CARB 2900 TR* и альфа-спектрометре *Canberra (мод. 7401)* [8], соответственно. Концентрацию радионуклидов в растениях определяли в золе, с последующим пересчетом на сухое вещество.

_		Удельная активность, Бк/кг							Кн		
Точка	Объект	40	(23	³² Th	22	⁸⁶ Ra	4016	232 T L	226 D •	
0100pa	исследования	грибы	почва	грибы	почва	грибы	почва	*°N	IN	220 K a	
1	груздь	480±100	130±30	<0,5	6,6±1,9	<0,4	<4,3	3,7	<0,07	<0,09	
2	сыроежка	770±150	600±120	<3,3	17±3	<2,5	7,4±1,5	1,3	<0,19	<0,34	
3	маслёнок	690±140	700±140	<3,4	17±3	<2,4	7,8±1,6	0,98	<0,2	<0,31	
4	маслёнок	740±150	750±150	<1,9	17±3	<1,5	13±3	0,99	<0,11	<0,11	
5	шампиньон	0,015±0,03	660±130	<3,7	9,5±2	<2,2	6,4±1,3	0,00002	<0,39	<0,34	
6	маслёнок	290±60	690±135	<1,4	15±3	<1,2	12±2	0,42	<0,09	<0,1	
7	маслёнок	0,012±0,02	670±130	<1,5	18±3	<1,0	<1,7	0,00001	<0,08	<0,59	
8	маслёнок	840±170	660±130	<2,1	16±3	<1,2	<2,1	1,27	<0,13	<0,57	
9	маслёнок	0,011±0,02	630±130	<1,0	14±3	<0,7	4,8±1,2	0,00001	<0,07	<0,14	
10	маслёнок	950±190	480±100	<1,4	23±5	<1,4	<3,2	1,98	<0,06	<0,44	
11	маслёнок	0,025±0,05	720±150	<2,4	18±4	<2,0	<2,4	0,00004	<0,13	<0,83	
12	лисички	0,010±0,02	650±130	<6,4	21±4	<6,5	<0,9	0,00001	<0,30	<7,2	
13	маслёнок	670±130	620±130	<1,2	12±2	<0,9	<2,1	1,08	<0,1	<0,43	
14	маслёнок	0,012±0,02	640±130	<3,3	18±4	<2,5	8,8±1,8	0,00002	<0,18	<0,28	
15	груздь	940±190	570±110	<1,6	12±2	<1,1	<1,9	1,6	<0,13	<0,58	
16	песочник	0,016±0,03	510±100	<2,7	14±3	<1,9	<2,1	0,00003	<0,19	<0,09	

Таблица 1. Значения удельной активности естественных радионуклидов ⁴⁰K, ²³²Th и ²²⁶Ra в грибах и почве, коэффициенты накопления (Кн)

Результаты и их обсуждение

Для количественной оценки поступления радионуклидов из почвы в грибы использовался коэффициент накопления (Кн) – отношение содержания радионуклида в единице массы грибов и почвы соответственно.

Значения удельной активности в почве и грибах, а также коэффициенты накопления (Кн) естественных радионуклидов 40 K, 232 Th и 226 Ra представлены в таблице 1.

По результатам проведенных анализов установлено, что в почве содержание ⁴⁰К варьирует от 130 до 750 Бк/кг, ²³²Th – от 6,6 до 23 Бк/кг, ²²⁶Ra – от <4,3 до 13 Бк/кг. В грибах количественные значения удельной активности установлены лишь для радионуклида ⁴⁰К (от 0,010 до 950 Бк/кг), ²³²Th и ²²⁶Ra оказалось ниже предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Соответственно, Кн ²³²Th и ²²⁶Ra рассчитаны оценочно, количественные величины Кн получены лишь для ⁴⁰К и составляют 0,00001–3,7, что соответствует слабому накоплению по аккумуляции химических элементов.

В таблице 2 представлены значения удельной активности в почве и грибах, а также коэффициенты накопления (Кн) искусственных радионуклидов $^{241}\mathrm{Am}, ^{137}\mathrm{Cs}, ^{90}\mathrm{Sr}$ и $^{239+240}\mathrm{Pu}.$

Из таблицы 2 видно, что максимальные концентрации в почве характерны для радионуклидов ¹³⁷Cs (от 4,3 до 62 Бк/кг) и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu (от <1 до 68 Бк/кг), содержание ⁹⁰Sr – не превышает 20 Бк/кг, ²⁴¹Am – 2,3 Бк/кг. В грибах значения удельной активности ¹³⁷Cs варьируют от 1,4 до 260 Бк/кг, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – от <0,022 до 1,1 Бк/кг, ⁹⁰Sr – от <0,05 до 350 Бк/кг, что,

согласно ГН СЭТОРБ РК [9], не превышает допустимый уровень. Содержание ²⁴¹Am, так же как и естественных радионуклидов ²³²Th и ²²⁶Ra, оказалось ниже предела обнаружения используемого аппаратурнометодического обеспечения. Таким образом, Кн ²⁴¹Am рассчитаны только оценочно (<0,59), единичные количественные значения Кн ²³⁹⁺²⁴⁰Pu составляют 0,0073 и 0,11, ⁹⁰Sr – 3,6 и 18.

Стабильно высоким накопление отличается ¹³⁷Cs, значения Кн для которого варьируют от 0,078 до 27 (при среднем арифметическое 5,8), что в целом согласуется с результатами ранее проведенных многочисленных исследований [1, 2], подтверждающих его более интенсивное поглощение, чем ⁹⁰Sr и радиоизотопов плутония. Также для радионуклида ¹³⁷Cs можно отметить определенные межвидовые различия в его накоплении грибами.

Для оценки возможного негативного воздействия естественных и искусственных радионуклидов при их поступлении с грибами выполнено определение эффективной дозы. Расчет производился с использованием формул:

$$E_{mg} = \sum E_{mgi} \tag{1}$$

$$E_{mgi} = A_{mi} \cdot q \cdot e_{dti} \cdot K \tag{2}$$

где: A_{mi} – удельная активность i-го радионуклида в грибах, Бк/кг; q – годовое потребление грибов, кг/год; e_{dii} – дозовый коэффициент для критической группы населения *i*-го радионуклида при поступлении его с пищей, Зв/Бк (Приложение 23 ГН СЭТОРБ) [9]; K – коэффициент снижения содержания радионуклидов в готовом пищевом продукте.

Точка	Объект		Удельная ак	тивность, Бк/	кг	Кн			
отбора	исследования	¹³⁷ Cs	90Sr	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	¹³⁷ Cs	90Sr	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
1	груздь	1,6±0,3	350±110	<0,2	<0,2	0.020	10	<0.097	<0.0093
I	почва	53±11	20±3	2,3±0,3	24±4	0,030	10	~ 0,007	~0,0003
2	сыроежка	1,4±0,4	<0,4	<0,3	1,1±0,2	0.048		<0.27	0.11
2	почва	29±6	-	1,1±0,3	9,7±1,4	0,040	_	~0,2 7	0,11
0	маслёнок	220±40	<0,6	<0,4	<0,08	15	<0.004	-0.21	
3	почва	15±3	7,1±1,1	1,3±0,4	<0,6	10	~ 0,004	~ 0,31	—
4	маслёнок	260±50	<0,7	<0,2	<0,08	27	-0.12		
4	почва	9,6±1,9	5,8±0,1	<0,4	<0,3	21	~ 0,12	_	_
F	шампиньон	1±0,2	40±6	<0,4	<0,072	0.062	26		<0.017
5	почва	16±3	11±2	<0,6	4,2±1,6	0,003	3,0	—	S0,017
6	маслёнок	110±20	<0,4	<0,2	<0,022	10	~0.053	-	<0,0033
0	почва	9,2±1,9	7,6±1,0	<0,5	6,6±1,0	12	~0,055		
7	маслёнок	4,3±0,9	<1,3	<0,2	0,5±0,1	0.079	<0.10	-0.14	0.0072
1	почва	55±11	6,8±1	1,4±0,4	68±6	0,078	<0,19	-0,14	0,0070
0	маслёнок	11±2	<0,5	<0,2	<0,044	2,6			<0.062
0	почва	4,3±0,9	<0,8	<0,6	0,7±0,2				<0,005
0	маслёнок	12±2	<0,4	<0,1	<0,058	15		_	<0,036
9	почва	8,0±1,6	<0,7	<0,5	1,6±0,3	1,5-	_	_	
10	маслёнок	8,2±1,6	<0,6	<0,2	<0,2	1.4	<0.25		~0.020
10	почва	5,7±1,8	2,4±0,4	<0,5	10±1	1,4	NU,25	—	<0,020
11	маслёнок	74±15	<0,5	<0,3	<0,1	2.4 <0.15	~0.18	<0.020	
11	почва	22±4	3,4±0,7	1,7±0,4	3,4±0,7	3,4	NO, 15	~ 0,10	<0,029
10	лисички	18±4	<3,8	<0,6	<0,6	15			<0.20
12	почва	12±2	1,9±0,6	<0,5	2,0±0,5	1,0	~2,0	—	<0,30
10	маслёнок	91±18	<0,6	<0,1	<0,064	1.0	<0.09E	<0.056	<0.0091
15	почва	47±9	7,1±1,1	1,8±0,4	7,9±1,1	1,9	NU,000	~0,050	<0,000 I
14	маслёнок	19±4	<0,8	<0,3	<0,033	0.1			
14	почва	8,9±1,8	<1,1	<0,5	<1,0	۷,۱	_	_	_
15	груздь	0,7±0,2	<1,1	<0,2	<0,025	0.016	-0.19	<0.00	<0.0028
GI	почва	45±9	6,1±0,9	0,9±0,3	8,9±1,9	0,016	~ 0,10	SU,22	<0,0020
16	песочник	11±2	<1,7	<0,3	<0,21	0.18	<0.15	<0.15	<0.015
10	почва	62±12	11±2	2,0±0,4	14±2	0,10	<0,15 <0,7	~ 0,15	NU,U15

Таблица 2. Значения удельной активности искусственных радионуклидов ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu в грибах и почве, коэффициенты накопления (Кн)

Таблица 3. Исходные данные для расчетной оценки годовой эффективной дозы

Параметр	⁴⁰ K	²³² Th	²²⁶ Ra	¹³⁷ Cs	90Sr	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu
Удельная активность в грибах (А _{ті}), Бк/кг	950	6,4	6,5	260	350	0,6	1,1
Годовое потребление (q), кг/год	5,7	5,7	5,7	5,7	5,7	5,7	5,7
Коэффициент кулинарной обработки (К)	1	1	1	1	1	1	1
Дозовый коэффициент (e _{dti}), Зв/Бк	4,2.10-8	4,5·10-7	1,5.10-6	1,3·10 ⁻⁸	8,0·10 ⁻⁸	3,7·10-7	4,2·10 ⁻⁷

При расчете дозы внутреннего облучения от потребления грибов для консервативной оценки принимаем максимальные значения удельной активности для искусственных и естественных радионуклидов. Согласно минимальным нормам потребления РК годовое потребление грибов составляет 5,7 кг/год [10]. Фактор кулинарной обработки принят одинаковым для всех радионуклидов (K=1). Исходные данные для расчетной оценки годовой эффективной дозы приведены в таблице 3.

Доза внутреннего облучения населения от естественных радионуклидов при потреблении грибов составит ~0,3 мЗв/год, где основной вклад вносит 40 K ~76%. Ожидаемая годовая эффективная доза внутреннего облучения населения от искусственных радионуклидов при потреблении грибов составит ~0,2 мЗв/год, где основной вклад вносит доза от радионуклида 90 Sr ~87%. Таким образом, суммарная ожидаемая годовая эффективная доза внутреннего облучения при потреблении грибов составит ~0,5 мЗв/год, где основной вклад вносит доза от естественных радионуклидов.

Заключение

На основе проведенных исследований установлено, что для почв исследуемой территории ожидаемо сравнительно высоким содержанием характеризуется ⁴⁰K, для искусственных радионуклидов повышенные значения удельной активности отмечаются для ¹³⁷Cs и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu. В грибах также количественно зафиксирован ⁴⁰K, в единичных случаях ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, стабильно количественные значения удельной активности установлены для ¹³⁷Cs. При этом накопление грибами ⁴⁰K соответствуют слабому по аккумуляции химических элементов, а накопление искусственных радионуклидов характеризуется более интенсивным для ¹³⁷Cs, нежели для ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu.

В целом, ни одно из полученных значений удельной активности радионуклидов в грибах на исследуемой территории не превышает допустимый уровень. Ожидаемая годовая эффективная доза внутреннего облучения населения от искусственных радионуклидов при потреблении грибов составит ~0,2 мЗв/год, что составляет менее 20 % от основного предела дозы для населения 1 мЗв/год, от естественных радионуклидов ~0,3 мЗв/год, при этом основной вклад вносит доза от естественных радионуклидов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки Республики Казахстан в рамках научного гранта AP05130568 «Исследование перераспределения радионуклидов в лесных экосистемах в отдаленный период после ядерных испытаний на Семипалатинском испытательном полигоне».

Литература

- 1. Переволоцкий А.Н. Распределение ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в лесных биогеоценозах. Гомель, РНИУП «Институт радиологии», 2006. 255 с.
- 2. Мамихин С.В. Роль макромицетов как накопителей ¹³⁷Сs в лесных экосистемах // Радиационная биология. Радиоэкология, 2012, том 52, № 4, с. 546–552.
- Tomoko M. Nakanishi, Keitaro Tanoi Agricultural Implications of the Fukushima Nuclear Accident. Tokyo, Japan, 2013. P. 163–176.
- Fei Tuo, Jing Zhang, Wenhong Li et al Radionuclides in mushrooms and soil-to-mushroom transfer factors in certain areas of China // Journal of Environmental Radioactivity. – 2017. – Vol. 180. – P. 59–64.
- Dementyev D., Bolsunovsky A. A long-term study of radionuclide concentrations in mushrooms in the 30-km zone around the Mining-and-Chemical Combine (Russia) // Journal Isotopes in Environmental and Health Studies. – 2020. – Vol. 56. – Issue 1. – P. 83–92.
- Jacob P., Likhtarev I. EUR 16541 Pathway analysis and dose distributions // European Commission, Luxemburg: Office for Official Publications of the European Communities, 1996. – VIII. – 130 p.
- Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре: МИ 2143-91: МИ 5.06.001.98 РК. – Алматы, 1998. – 18 с.
- 8. Методика определения содержания искусственных радионуклидов плутония-(239+240), стронция-90 в объектах окружающей среды (почвах, грунтах, донных отложениях и растениях). Алматы, 2010. 25 с.
- 9. Гигиенические нормативы «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности» РК. – № 201 от 03.02.2012.
- Минимальные нормы потребления основных продуктов питания для различных социальных групп населения Республики Казахстан http://adilet.zan.kz/rus/docs/V1500011944#z4.

СЕМЕЙ СЫНАҚ ПОЛИГОНЫНЫҢ ӘСЕР ЕТУ АЙМАҒЫНДАҒЫ САҢЫРАУҚҰЛАҚТАРДАҒЫ РАДИОНУКЛИДТЕРДІҢ ҚҰРАМЫ

¹⁾ Ю.С. Шевченко, ¹⁾ Н.В. Ларионова, ²⁾ В.В. Полевик, ¹⁾ А.В. Топорова, ¹⁾ А.О. Айдарханов

¹⁾ ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан ²⁾ Шәкәрім атындағы мемлекеттік университеті, Семей, Қазақстан

Мақалада Семей сынақ полигонына (SIP) жақын жатқан аумақта, бірінші ядролық сынақтан (29.08.49 ж.) кейінгі радиоактивті түсу іздері өту аймағында саңырауқұлақтардың табиғи (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th) және жасанды (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) радионуклидтерді жинақтау деңгейі мен параметрлерін зерттеу нәтижелері келтірілген. Жалпы алғанда, саңырауқұлақтардағы радионуклидтердің меншікті белсенділігінің алынған шамаларының ешбірі рұқсат етілген деңгейден аспайтындығы анықталды. Зерттеліп жатқан аумақта саңырауқұлақтарды тұтыну кезінде радионуклидтердің пероралды түсуінен ішкі сәулеленуінің жиынтық дозасына негізгі үлесті табиғи радионуклидтерден алынған доза қосады.

Кілт сөздер: радиоэкология, Семей сынақ полигоны (ССП), табиғи радионуклидтер (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th), жасанды радионуклидтер (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu), саңырауқұлақтар, доза.

THE CONTENT OF RADIONUCLIDES IN MUSHROOMS IN THE IMPACT ZONE OF SEMIPALATINSK TEST SITE

¹⁾ Yu.S. Shevchenko, ¹⁾ N.V. Larionova, ²⁾ V.V. Polevik, ¹⁾ A.V. Toporova, ¹⁾ A.O. Aidarkhanov

¹⁾ "Institute of Radiation Safety and Ecology" Branch RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan ²⁾ Shakarim State University, Semey, Kazakhstan

The article provides research findings of levels and parameters of naturally occurring (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th) and artificial (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) radionuclides accumulation by mushrooms in the territory adjacent to Semipalatinsk Test Site (STS), in the zone of fallout plume passing after the first nuclear test (August 29, 1949). It was found that, as a whole, none of activity concentration values, resulted for radionuclides in mushrooms, exceeds the permissible level. The main contribution to the total dose of internal exposure through ingestion of radionuclides, when mushrooms are consumed in the territory of interest, is made by the dose from naturally occurring radionuclides.

Keywords: radioecology, Semipalatinsk Test Site (STS), naturally occurring radionuclides (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th), artificial radionuclides (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu), mushrooms, dose.

УДК 577.4: 504.4. 054:539.16

ОЦЕНКА «ФОНОВЫХ» КОНЦЕНТРАЦИЙ ЕСТЕСТВЕННЫХ И ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОДЕ ВОДНЫХ ОБЪЕКТОВ ВОСТОЧНО-КАЗАХСТАНСКОЙ ОБЛАСТИ

Айдарханова А.К., Кумисханова С.Б., Ляхова О.Н., Тлеуканов Е.Н.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе приводятся данные по определению естественных (ЕРН) и искусственных (ИРН) радионуклидов в водах Восточно-Казахстанской области (ВКО). Объектами исследования являлись водные объекты различного типа: динамические – реки Иртыш, Бухтарма, Ульба, Шар и Аягоз и статические – Бухтарминское и Шульбинское водохранилища и озеро Зайсан. Показано, что концентрация ЕРН и ИРН в водах ВКО на 2–4 порядка ниже значений уровня вмешательства, установленных Гигиеническими нормативами Республики Казахстан.

Введение

Активная деятельность человека очень часто неблагоприятно сказывается на окружающем мире живой и неживой природы. В связи с развитием атомной энергетики, испытаниями ядерного оружия и другими видами антропогенной деятельности все более актуальной становится проблема радиационного загрязнения различных объектов окружающей среды, в том числе и водных сред.

Радиоактивность водной среды формируется радионуклидами естественного (ЕРН) и искусственного (ИРН) происхождения. Содержание ЕРН в воде может повышаться в результате сбросов и выбросов производственных предприятий (горнодобывающей и перерабатывающей промышленности, цветной металлургии, угольной промышленности, предприятий по производству керамических изделий, минеральных удобрений и др.). Содержание ИРН в водных объектах может повышаться в результате радиационных аварий, а также вследствие сбросов и выбросов предприятий ядерной энергетики и др. [1, 2]

Одним из способов контроля за содержанием радионуклидов в водной среде является радиоэкологический мониторинг водной среды – система постоянного наблюдения и контроля наличия и степени загрязнения радионуклидами природных вод. Согласно нормативным документам [3, 4] важнейшей и неотъемлемой частью при проведении мониторинга является определение локальных «фоновых» концентраций радионуклидов. Сравнение результатов радиационных измерений с результатами определения фоновых значений позволяет установить неблагоприятные тенденции в изменении качества окружающей среды, построить прогноз развития данных изменений и, в случае необходимости, выработать соответствующие управленческие решения, направленные на снижение негативного воздействия на окружающую среду.

Использование значений фоновых концентраций радионуклидов для качественной оценки характера радионуклидного загрязнения водных объектов отражено в различных научно-исследовательских работах. Так, например, при изучении закономерности поведения ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs в озерных экосистемах Восточ-

но-Уральского радиоактивного следа, образовавшегося в результате радиационной аварии, значения удельной активности радионуклидов сравнивались с фоновыми уровнями, полученными в ходе выполнения работ [5, 6]. Пример использования значений фоновых концентраций радионуклидов ⁹⁰Sr и ¹³⁷Cs в воде при работе атомных электростанций приведен в работе [7].

Тем не менее, значения фоновых концентраций радионуклидов в воде водных объектов, определенные в рамках каких-либо научно-исследовательских, мониторинговых работ, имеют территориальную привязку и не могут быть применены для других территорий.

Таким образом, для проведения корректной оценки радионуклидного загрязнения при мониторинговых исследованиях водных объектов Восточно-Казахстанской области (ВКО) необходимо определение фоновых концентраций, характерных для данной территории.

ВКО относится к наиболее обеспеченному водными ресурсами региону Республики Казахстан, что определено ее природно-климатическими условиями. Водный фонд области включает реки, озера, болота, пруды и водохранилища, подземные воды и ледники [8, 9]. Центральное место в гидрографической сети области занимает трансграничная река Иртыш, которая протекает по территории трех государств Китая, Казахстана и России и является водным объектом особого государственного значения.

Восточный Казахстан – это крупный промышленный центр, где базовой отраслью экономики является цветная металлургия. Деятельность горнодобывающих, горно-обогатительных, металлургических и машиностроительных предприятий, а также сточные воды крупных городов, включая Усть-Каменогорск и Семей, могут оказывать существенное влияние на техногенное загрязнение водной среды на территории самой области, и далеко за ее пределами.

На загрязнение искусственными радионуклидами водной среды ВКО существенное влияние могли оказать испытания ядерного оружия, проводившиеся на Семипалатинском испытательном полигоне (СИП): часть следов от ядерных испытаний проходит в области водосбора бассейна реки Иртыш. Основное опасение, с точки зрения возможно радиоактивного загрязнения, вызывает река Шаган, которая проходит по территории СИП и впадает в реку Иртыш [10]. В настоящее время основным радионуклидным загрязнителем вод реки Шаган является тритий (³H). Ранее установлено, что источником тритиевого загрязнения поверхностных вод служат подземные воды, поступающие в русло реки Шаган с площадки «Балапан», где проводились подземные ядерные испытания в вертикальных скважинах [11].

Многочисленные исследования состояния водной среды ВКО связаны с определением химических показателей и содержанием тяжелых металлов в воде [12-16]. По данным «Казгидромет», водный фонд ВКО в большей степени имеет «умеренный и высокий уровень загрязнения» по химическим показателям: превышение ПДК по содержанию сульфатов $SO_4^{2^-}$, нитритов NO_2^- , аммония NH_4^+ , и некоторых тяжелых металлов (Cu, Zn, Mn) [17]. Однако радиационные показатели водных объектов ВКО изучены слабо, достоверной информации об уровнях содержания радионуклидов в водах данного региона практически нет. Лишь в работе Липихиной А.В. [18] приводятся данные о содержании ⁴⁰К, ²³²Th, ²²⁶Ra, ²³⁸U и ¹³⁷Сѕ в питьевой воде населенных пунктов г. Усть-Каменогорск и пос. Глубокое.

Анализ перечня наиболее опасных радионуклидов, которые могут содержаться в воде на данной территории, показал необходимость исследования фоновых концентраций ⁴⁰K, ²³²Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Po, ²³⁸U, ³H, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, что и является целью данной работы.

1. Материалы и методы исследования

1.1 Объекты исследования

Для определения фоновых концентраций ЕРН и ИРН в водах ВКО исследованы водные объекты различного типа: динамические – реки Иртыш, Бухтарма, Ульба, Шар и Аягоз и статические – Бухтарминское и Шульбинское водохранилища и озеро Зайсан.

Река Иртыш является одной из важнейших водных артерий Казахстана, в зоне которой проживает более 2,5 миллиона человек. Река Иртыш является трансграничной, ее длина составляет 4248 км, в пределах Казахстана – 1698 км, общая площадь водосбора – 1643 тыс. км². В бассейне Иртыша насчитывается более 700 притоков, из которых 4 крупных реки (Бухтарма, Уба, Курчум и Ульба) протяженностью более 200 км, остальные относятся к категории малых рек с общей протяжённостью 17,7 тыс. км. К правобережным притокам Иртыша (помимо указанных 4 крупных рек) относятся реки Южного Алтая с меньшей водностью, наиболее крупные из которых – Каба, Алкабек, Кальджир, Нарым. Ещё меньшей водностью отличаются реки левобережья Иртыша, особенно Зайсанской котловины – Кендерлык, Уйдене, Кандысу, Большая Буконь, Чар, Кокпекты. Сток реки Иртыш зарегулирован каскадом водохранилищ – Бухтарминское, Усть-Каменогорское и Шульбинское [19, 20]. Река обеспечивает водой население и хозяйство не только в пределах своего бассейна, но и большую территорию маловодного Центрального Казахстана через канал Иртыш-Караганда.

Река Бухтарма — крупнейший приток Иртыша длиной 405 км, впадает в Бухтарминское водохранилище. В её бассейне учтено 124 реки суммарной длиной 2919 км. В верховьях Бухтарма — горная река, текущая в узкой долине, в низовьях характер течения более спокойный [21].

Река Ульба является правым притоком реки Иртыш, протяжённостью 98 км, в бассейне учтено 44 реки общей длиной 1014 км, в том числе река Малая Ульба, протяжённостью 111 км. Образуется при слиянии рек Громотуха, Филипповка, Быструха и Тихая, впадает в Иртыш в г. Усть-Каменогорске [22].

Река Шар является левым притоком Иртыша, длиной 230 км. Протекает через Кокпектинский и Жарминский районы области. Исток реки находится в 20 км севернее села Кокпекты, устье – в 12 км западнее посёлка Шульбинск. На реке расположено Чарское водохранилище, а также подпитываемое рекой рукотворное Чарское озеро [23].

Река Аягоз длиной 492 км – самая северная из 7 рек, давших название Семиреченскому краю. Река берёт начало с северного хребта Тарбагатай, сначала протекает по горной местности, далее, ниже города Аягоз – по полупустынной местности. Воды реки достигают восточной части озера Балхаш [24].

Бухтарминское водохранилище – крупнейшее в Казахстане, входит в пятёрку крупнейших искусственных водоёмов мира. Водохранилище образовано плотиной Бухтарминской ГЭС на реке Иртыш, занимает большую часть Бухтарминской впадины. Площадь водохранилища – 5490 км², длина – 425 км, наибольшая ширина – 35 км, средняя глубина 9,6 м [25].

Шульбинское водохранилище – водохранилище, образованное плотиной Шульбинской ГЭС на реке Иртыш. Площадь водохранилища – 255 км², длина – около 53 км, наибольшая ширина – 6 км [26].

Озеро Зайсан – самое большое озеро в ВКО, расположено в тектонической межгорной впадине, заключенной между горными хребтами Алтайским, Калбинским и Тарбагатайским. Озеро проточное, в него впадают реки: Черный Иртыш, Кокпекты, Жарма, Кендирлик и другие, а вытекает одна река – Иртыш. Озеро находится на высоте 386 м, его длина 105 км, а ширина – изменяется в пределах от 22 до 48 км, максимальная глубина 15 м [27, 28].

Расположение исследованных водных объектов и точки отбора проб воды представлены на рисунке. Точки отбора проб воды выбирались на некотором расстоянии от населенного пункта, для рек – до прохождения через населенный пункт, т.е. в месте наименьшего антропогенного воздействия.



Рисунок. Расположение водных объектов ВКО и точки отбора проб

1.2 Методы определения фоновых концентраций ЕРН и ИРН в воде

Предварительно, для получения общей характеристики водных объектов, проведено изучение общего химического состава вод с использованием стандартных методик [29]: уровень pH, степень минерализации и жесткости, макрокомпоненты основного состава (Na⁺, K⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Cl⁻, HCO⁻₃, SO4²⁻).

При определении фоновых концентраций ЕРН и ИРН в воде необходимо применение методических подходов, которые позволяют понизить предел обнаружения удельной активности исследуемых радионуклидов, т.е. повысить чувствительность применяемого метода. Для этих целей в мировой практике используются методы концентрирования и разделения определяемых компонентов и их комбинации. Также для этих целей можно увеличить объем анализируемого образца.

Для определения EPH ⁴⁰K, ²³²Th и ²²⁶Ra в воде использовался физический метод предварительного концентрирования – выпаривание из больших объемов пробы, который применим для образцов воды с низким содержанием солей и направлен на концентрирование радионуклидов в минимальном объеме. Объемом проб воды для анализа составлял 100 л, каждая из которых выпаривались до сухого остатка. Удельная активность радионуклидов в сухом остатке определялась при помощи гамма-спектрометрического метода.

Определение содержания ²¹⁰Ро проводилось из пробы воды объемом 1,5 л, после радиохимического выделения и автоосаждения на медные диски альфаспектрометрическим методом. Для определения низких концентраций ²³⁸U в пробах воды использовался метод анализа на масс-спектрометре с индуктивно-связанной плазмой *ICP MASS Spectrometer ELAN 9000*, который позволяет проводить анализ ультраследового содержания элементов.

Оценка содержания ³Н, включающая подготовку проб воды методом дистилляции и бета-спектрометрический анализ, проводилась в соответствии с международным стандартом [30] Для определения удельной активности ³Н использовался низкофоновый радиометр альфа-, бета-излучения *SL-300* фирмы *Hidex*.

При определении содержания в воде²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ⁹⁰Sr и ¹³⁷Сѕ для повышения чувствительности применяемой методики объем пробы воды также увеличили до 100 л. В процессе подготовки пробы применили двухстадийное концентрирование, основанное на физическом концентрировании (выпаривании) проб с объема 100 л до 10 л, и дальнейшем концентрировании радионуклидов методом последовательного соосаждения. Определение содержания ²³⁹⁺²⁴⁰Ри проводилось альфа-спектрометрическим методом после предварительного концентрирования методом соосаждения с гидроксидом железа (III), экстракционнохроматографического выделения и электролитического осаждения. Определение содержания ⁹⁰Sr выполняется по дочернему 90Ү бета-спектрометрическим методом после предварительного концентрирования методом соосаждения с карбонатом кальция и радиохимического выделения. Определение содержания ¹³⁷Сѕ проводится гамма-спектрометрическим методом после предварительного концентрирования методом соосаждения с гексацианоферратом (II) мели.

2 Результаты и их обсуждение

Результаты определения химического состава вод исследуемых объектов представлены в таблице 1.

Анализ химического состава вод в изученных водных объектах ВКО показал, что воды по уровню рН являются нейтральными (6,5–7,5), по степени минерализации – пресными, по степени жесткости воды реки Бухтармы, Бухтарминского и Шульбинского водохранилищ – очень мягкими, реки Иртыш и озера Зайсан – мягкими, рек Ульба, Шар и Аягоз – средней жесткости. По катионно-анионному составу воды исследуемых объектов относятся к гидрокарбонатному классу, группе кальция: доминирующим анионом является гидрокарбонат-ион, на долю которого приходится более 90% экв. анионов; среди катионов преобладает кальций, составляя 70–80% экв. от общей суммы катионов. Все воды по определенным химическим показателям пригодны для использования в хозяйственных целях, согласно Санитарным правилам, установленным в Республике Казахстан [31].

Результаты определения фоновых концентраций EPH (⁴⁰K, ²³²Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Po, ²³⁸U) и ИРН (³H, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) в воде представлены в таблицах 2 и 3.

			-							
Nº	Nº Maara ar€ana		Минерализация,	Жесткость,	Содержани	е катионо	в, мг/дм ³	Содержание анионов, мг/дм ³		
пп	место отоора	рп	мг/дм ³	ммоль/дм ³	Na⁺+K⁺	Ca ²⁺	Mg²⁺	Cŀ	HCO3.	SO42-
1	р. Иртыш	6,8	160	2,0	10	35	10	10	80	15
2	р. Бухтарма	7,5	60	0,8	2,0	10	2,0	10	35	0
3	р. Ульба	7,0	240	5,0	5,0	45	10	30	120	30
4	р. Шар	7,0	380	7,0	10	75	40	50	150	55
5	р. Аягоз	6,5	450	6,5	40	80	30	70	150	80
6	Бухтарминское вдхр.	7,0	155	1,0	15	20	5,0	15	80	20
7	Шульбинское вдхр.	7,0	145	1,5	10	15	10	20	60	30
8	оз. Зайсан	7,5	250	2,3	25	30	10	60	100	25

Таблица 1. Химический состав воды водных объектов ВКО

Таблица 2. Содержание ЕРН в воде

Maata atfana	Удельная активность, Бк/кг							
место отобра	⁴⁰ K	²³² Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Po	238 U			
р. Иртыш	0,10±0,01	<5,0.10-3	<3,5.10-3	(2,8±0,5)·10 ⁻³	(1,6±0,1)·10 ⁻²			
р. Бухтарма	0,85±0,09	<6,0.10-3	<3,5.10-3	(7,6±2,1)·10 ⁻⁴	(3,8±0,25)·10 ⁻³			
р. Ульба	<2,0.10-2	<2,5.10-3	<3,0.10-3	(2,2±0,2)·10 ⁻³	(1,3±0,1)·10 ⁻²			
р. Шар	<5,0.10-2	<5,0.10-3	<3,5.10⁻₃	<1,1.10-4	(6,0±0,9)·10 ⁻²			
р. Аягоз	<4,5.10⁻²	<5,0.10-3	<3,5.10⁻₃	(1,4±0,6)·10 ⁻⁴	(9,9±0,7)·10 ⁻²			
Бухтарминское вдхр.	<4,0.10-2	<3,0.10-3	<3,0.10-3	(3,5±1,2)·10 ⁻⁴	(8,8±1,1)·10 ⁻³			
Шульбинское вдхр.	<6,5·10 ⁻²	<6,0.10-3	<3,0.10-3	(2,9±1,1)·10 ⁻⁴	(1,4±0,1)·10 ⁻²			
оз. Зайсан	0,9±0,1	<7,0.10-3	<4,0.10-3	<1,8 [.] 10 ⁻⁵	(3,8±0,3)·10 ⁻²			
Уровень вмешательства	_	0,6	0,49	0,11	3			

Таблица 3. Содержание ИРН в воде

Maata atfana	Удельная активность, Бк/кг							
место отобра	зН	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu				
р. Иртыш	<4	<2,0.10⁻₃	(6,0±0,3)·10 ⁻³	<1,4.10-4				
р. Бухтарма	<4	<1,0.10⁻₃	<3,0·10 ⁻³	<9,9.10-6				
р. Ульба	<4	<1,0.10⁻₃	<3,0·10 ⁻³	(4,8±2,5)·10⁻⁵				
р. Шар	<4	<1,0.10⁻₃	<4,0·10 ⁻³	(1,2±0,5)·10 ⁻⁴				
р. Аягоз	<4	<1,0.10⁻₃	<4,0·10 ⁻³	<1,2.10-5				
Бухтарминское вдхр.	<4	<2,0.10⁻₃	<3,0·10 ⁻³	<1,5.10-4				
Шульбинское вдхр.	<4	<1,0.10⁻₃	(1,8±0,3)·10⁻₃	<9,5.10-₅				
оз. Зайсан	<4	<1,0.10⁻₃	<3,0·10 ⁻³	<1,5·10 ⁻⁵				
Уровень вмешательства	7600	11	4,9	0,55				

Таким образом, фоновые концентрации ЕРН и ИРН в воде водных объектов ВКО составляют: для 40 K от <2,0·10⁻² до 0,9±0,09 Бк/кг, для 232 Th – <7,0·10⁻³ Бк/кг, для 226 Ra – <3,0·10⁻³ Бк/кг, для 210 Po от <1,8·10⁻⁵ до (2,8±0,5)·10⁻³ Бк/кг, для 238 U от (3,8±0,25)·10⁻³ до (9,9±0,68)·10⁻² Бк/кг (содержится в (7,9±0,54)·10⁻⁶ г/л), для 3 H – <4 Бк/кг, для 137 Cs – <2,0·10⁻³ Бк/кг, для $^{239+240}$ Pu от <9,9·10⁻⁶ до (1,2±0,5)·10⁻⁴ Бк/кг. Полученные данные по фоновым концентрациям ЕРН и ИРН в воде на 2–4 порядка ниже уровня вмешательства, согласно Гигиеническим нормативам, установленным в Республике Казахстан [32].

Согласно литературным данным, фоновые концентрации ЕРН в континентальных водах (водах рек и озер) лежат в пределах для 40 K от 3,7·10⁻² до 0,6 Бк/л, для 232 Th от 8,0·10⁻⁶ до 2·10⁻³ Бк/л, для 226 Ra – от 9,2·10⁻³ до 7,4·10⁻² Бк/л, для 210 Po от 1,9·10⁻⁴ до 3,7·10⁻³ Бк/л, для 238 U – от 2,0·10⁻⁸ до 5,0·10⁻⁵ г/л [1]. Фоновые концентрации ИРН для ³H находится на уровне от 2 до 4 Бк/л, для 90 Sr от 4·10⁻³ до 10·10⁻³ Бк/л и для 137 Cs от 10·10⁻³ до 20·10⁻³ Бк/л [33]. Полученные данные по фоновым концентрациям ЕРН и ИРН в водах ВКО входят в пределы, полученные для континентальных вод.

Заключение

В результате проведенных исследований определены фоновые концентрации ЕРН (⁴⁰K, ²³²Th, ²²⁶Ra, ²¹⁰Po, ²³⁸U) и ИРН (³H, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu) в водных объектах ВКО различного типа. Полученные значения уровня содержания ЕРН и ИРН в воде на 2–4 порядка ниже уровня вмешательства, согласно Гигиеническим нормативам, установленным в Республике Казахстан. По определенным химическим показателям все воды пригодны для использования в хозяйственных целях, согласно Санитарным правилам, установленным в Республике Казахстан. Полученные значения в дальнейшем могут использоваться в качестве базовых показателей для оценки радиационного состояния вод при мониторинге водных объектов.

Работа выполнена в рамках темы «Исследование базовых характеристик радионуклидного загрязнения в водной среде» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Бекман И.Н. Радиоэкология и экологическая радиохимия: учебник для бакалавриата и магистратуры. М.: Издательство Юрайт, 2018. С. 246–278.
- 2. Бадрутдинов О.Р., Тюменев Р.С., Шуралев Э.А., Мукминов М.Н. Радиоактивность экосистем. Казань: Казан. ун-т, 2017. С. 20–36.
- 3. Мониторинг окружающей среды и источников для целей радиационной защиты. Руководство по безопасности. № RS-G-1.8. МАГАТЭ. Вена, 2016 – 147 с.
- 4. Зона наблюдения радиационного объекта. Организация и проведение радиационного контроля окружающей среды МР 2.6.1.27-2003 Методические рекомендации, 2003 68 с.
- Левина С.Г. Особенности аккумуляции долгоживущих радионуклидов и микроэлементов в почвах водосборных территорий озер Большой и Малый Игиш в поставарийный период (средняя часть BУPCa) / С.Г. Левина, А.В. Аклеев, В.В. Дерягин, В.Н. Удачин, Г.Г. Корман // Вопросы радиационной безопасности. – 2009. – № 1. - С. 63–72.
- 6. Ksenija Kablova et al. Содержание радионуклидов в воде и донных отложениях озера Малые Кирпичики (Восточно-Уральский радиоактивный след). По материалам LVI International Research and Practical Conference "Blooming planet: origins, evolution and the future of life on Earth", London, UK, 2013.
- Голованчиков А.Б. Анализ процессов очистки охлаждающей воды реакторов АЭС от радиоактивных изотопов стронция и цезия / А.Б. Голованчиков, Л.В. Курылева, В.Ф. Каблов, Б.А. Дулькин // Известия ВолгГТУ. Сер. Актуальные проблемы управления, вычислительной техники и информатики в технических системах. Вып. 22. – Волгоград, 2014. – № 25 (152). – С. 55–60.
- 8. Достай Ж.Д. Природные воды Казахстана: ресурсы, режим, качество и прогноз / Водные ресурсы Казахстана: оценка, прогноз, управление. Том II. Алматы, 2012. 330 с.
- 9. Панин М.С. Экология Казахстана: учебник для вузов / Под. ред. Байтулина И.О. Семипалатинск: СГПИ, 2005. С. 89– 102.
- 10. Айдарханов А.О. Радиоактивное загрязнение вод реки Шаган / А.О. Айдарханов, С.Н. Лукашенко, А.К. Айдарханова [и др.]. // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сб. тр. Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2011–2012 гг.] / под рук. Лукашенко С.Н. – Павлодар: Дом печати, 2013. – Т.1. – Вып. 4. – С. 249–255.
- 11. Есимбеков А.Ж. Исследование механизмов и путей загрязнения тритием поверхностных вод р. Шаган / А.Ж. Есимбеков, С.Н. Лукашенко, А.О. Айдарханов, М.Р. Актаев // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сб. тр. Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2014–2016 гг.] / под рук. Лукашенко С.Н. – Павлодар: Дом печати, 2017. – Т.2. – Вып. 6. – С. 361–371.
- 12. Батралина Н.Ж. Состояние водных ресурсов Восточно-Казахстанской Области // Гигиена труда и медицинская экология. № 4 (53), 2016. С. 34–40.
- Кудеринова Н.А., Толеукадыров Е.Т. Состояние водных ресурсов Восточно-Казахстанской области / Всемирный день охраны окружающей среды (Экологические чтения - 2017): материалы международ. научно-практ. конференции, 3–5 июня 2017 г. – Омск: Литера, 2017. – С. 167–169.

- 14. Мамбетказиева Р.А., Данилова А.Н., Мабетказиев Е.А. Региональные особенности природной среды Восточного Казахстана // Вестник КАСУ. 2011. № 6. С. 35–39.
- 15. Панин М.С. Тяжелые металлы в воде и донных отложениях Иртыша и ее притоков // Химия в интересах ее устойчивого развития. 2000. № 6. С. 845–853.
- Адрышев А.К., Сагынганова И.К. Источники загрязнения тяжелыми металлами рек Иртыш и Ульба / Вестник ВКГТУ. Экология № 3. – Усть-Каменогорск, 2008. – С. 110–115.
- 17. Информационный бюллетень о состоянии окружающей среды Республики Казахстан за 2019 г. / МЭ РК, РГП «Казгидромет», Департамент экологического мониторинга. 2019. С. 205–213.
- 18. Липихина А.В. Содержание радионуклидов в питьевой воде и продуктах питания промышленных регионов Казахстана / А.В. Липихина, А.Е. Мансарина, Г.К. Кошпесова, Ш.Б. и др. / Вестник КазНМУ, 2014 – https://kaznmu.kz/press/?s=УДК +612.392.7/8-613.31-614.876(574.5) (Электронный ресурс, по состоянию на 18.05.2020).
- 19. Фролова Н.Л., Воробьевский И.Б. Гидроэкологические ограничения водопользования в бассейне Иртыша / Вестн. Моск. Ун-та сер. 5. География. 2011. № 6 С. 34–42.
- 20. Винокуров Ю.И. Институциональное партнерство в трансграничном бассейне реки Иртыш / Ю.И. Винокуров, Б.А. Красноярова, Г.Я. Барышников, О.Н. Барышникова, Т.В. Антюфеева, С.Н. Шарабарина // Известия Алтайского отделения Рус. геогр. о-ва, 2018. № 1 (48) С. 17–23.
- 21. Буктырма // Казахстан. Национальная энциклопедия. Алматы: Қазақ энциклопедиясы, 2004. Т. І. С. 462.
- 22. Ульба (река) // Большая советская энциклопедия: [в 30 т.] / гл. ред. А. М. Прохоров. 3-е изд. М.: Советская энциклопедия, 1969–1978.
- 23. Чар (река) https://dic.academic.ru/dic.nsf/ruwiki/1674363 (Электронный ресурс, по состоянию на 18.05.2020 г).

24. Аягуз // Словарь современных географических названий / Рус. геогр. о-во. Моск. центр; Под общ. ред. акад. В. М. Котлякова. Институт географии РАН. – Екатеринбург: У-Фактория, 2006.

- 25. Буктырминское водохранилище // Казахстан. Национальная энциклопедия. Алматы: Қазақ энциклопедиясы, 2004. Т. І. С. 462.
- 26. Ануарбеков С.М. Влияние попусков воды Шульбинской ГЭС на воспроизводство рыб Шульбинского водохранилища / Ануарбеков С.М., Касымханов А.М., Аубакиров Б.С. / Всемирный день охраны окружающей среды (Экологические чтения – 2017): материалы международ. научно-практ. конференции, 3–5 июня 2017 г. – Омск: Литера, 2017. – С. 10–13.
- 27. Жайсан // Казахстан. Национальная энциклопедия. Алматы: Қазақ энциклопедиясы, 2005. Т. II. С. 267.
- 28. Евсеева А.А., Притыкин И.В. Рыбохозяйственная мелиорация для сохранения и увеличения рыбохозяйственного потенциала оз. Жайсан / Всемирный день охраны окружающей среды (Экологические чтения - 2017): материалы международ. научно-практ. конференции, 3–5 июня 2017 г. – Омск: Литера, 2017. – С. 112–115.
- 29. ГОСТ 26449.1-85 Установки дистилляционные опреснительные стационарные. Методы химического анализа соленых вод. ГОСТ 26449.1-85. Москва, 1987.
- 30. ISO 9698:2019 (E) Качество воды. Определение удельной активности трития метод жидкостно-сцинтилляционного счета. ISO, 2019. 26 с.
- 31. Санитарные правила «Санитарно-эпидемиологические требования к водоисточникам, местам водозабора для хозяйственно-питьевых целей, хозяйственно-питьевому водоснабжению и местам культурно-бытового водопользования и безопасности водных объектов» / Утверждены приказом министра национальной экономики Республики Казахстан от 16 марта 2015 года – № 209.
- 32. Гигиенические нормативы «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности» / Утверждены приказом министра национальной экономики Республики Казахстан от 27 февраля 2015 года – № 155.
- Мироненко В.А., Румынин В.Г. Проблемы гидроэкологии. Монография в 3-х томах. Том 3 (книга 2). Прикладные исследования. М.: Издательство МГГУ, 1999. – С. 713–716.

ШЫҒЫС ҚАЗАҚСТАН ОБЛЫСЫ СУ ОБЪЕКТІЛЕРІНІҢ СУЫНДАҒЫ ТАБИҒИ ЖӘНЕ ЖАСАНДЫ РАДИОНУКЛИДТЕРДІҢ «ФОНДЫҚ» ШОҒЫРЛАНУЫН БАҒАЛАУ

А.К. Айдарханова, С.Б. Күмісханова, О.Н. Ляхова, Е.Н. Тлеуканов

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Зерттеу жұмысында Шығыс Қазақстан облысының (ШҚО) суларында табиғи (ТРН) және жасанды (ЖРН) радионуклидтердің «фондық» шоғырлануын анықтау бойынша деректер келтіріледі. Зерттеу объектілері ретінде әртүрлі типтегі сулар алынған: динамикалық – Ертіс, Бұқтырма, Үлбі, Шар және Аягөз өзендері және статистикалық – Бұқтырма және Шүлбі су қоймалары мен Зайсан көлі. ШҚО суларындағы ТРН мен ЖРН концентрациясы Қазақстан Республикасының гигиеналық нормативтерінде белгіленген араласу деңгейінің мәнінен 2–4 ретке төмен екендігі көрсетілген.

EVALUATION OF "BACKGROUND" CONCENTRATIONS OF NATURAL AND MAN-MADE RADIONUCLIDES IN WATER OF WATER BODIES IN THE EAST KAZAKHSTAN REGION

A.K. Aidarkhanova, S.B. Kumiskhanova, O.N. Lyakhova, E.N. Tleukanov

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper presents data on the determination of "background" concentrations of natural (NRN) and man-made (MRN) radionuclides in the waters of the East Kazakhstan region (EKR). The objects of study were water bodies of various types: dynamic – the Irtysh, Bukhtarma, Ulba, Shar and Ayagoz rivers and static – the Bukhtarma and Shulba reservoirs and Zaysan Lake. It is shown that the concentration of NRN and MRN in the waters of EKR is 2–4 orders of magnitude lower than the values of the level of intervention established by the Hygienic standards of the Republic of Kazakhstan.

УДК 539.128.4:546.799.4

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНОГО МЕТОДА ПОЛУЧЕНИЯ СЧЕТНОГО ОБРАЗЦА ДЛЯ АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ

Зверева И.О., Каширский В.В.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье рассмотрены наиболее распространённые методы получения счетного образца для альфа-спектрометрического определения изотопов плутония – соосаждение с редкоземельными элементами и электролитический метод осаждения. Установлено, что наилучшие источники для альфа-спектрометрии (хорошо воспроизводимые, особо тонкие образцы с равномерным распределением вещества по площади активного слоя) получают электролитическим осаждением. Для данного метода определены оптимальные параметры процесса получения счетных образцов (сила тока, время осаждения, геометрия электролитической ячейки) и выбран состав электролита. Разработана и сконструирована улучшенная электролитическая установка с высоко стабилизированным напряжением.

Ключевые слова: плутоний, соосаждение, фильтрация, редкоземельные элементы, электролитическое осаждение, электролит, химический выход.

Введение

Альфа-спектрометрическое определение плутония – последняя, но одна из наиболее важных стадий радиохимического анализа изотопов плутония. Одним из главных критериев при обработке альфа-спектра является качество полученного образца, которое напрямую влияет на точность и достоверность проводимого измерения. В литературе приводятся сведения о различных способах получения счетного образца – катодное распыление, испарение, вакуумная сублимация, соосаждение и электролитическое осаждение [1]. В массовом анализе наиболее часто применяются два последних. Остальные перечисленные методы имеют ряд недостатков: пленка (тонкий слой вещества на подложках из нержавеющей стали, полученный одним из способов) практически всегда получается неоднородной, а по завершении процесса на поверхности образуются кристаллы примесей.

Целью настоящей работы было определение наиболее оптимального метода получения счетного образца для альфа-спектрометрического определения изотопов плутония на основании сравнительного анализа соосаждения с редкоземельными элементами и электролитического осаждения.

Экспериментальная часть

В данной работе рассмотрены наиболее часто применяемые методы получения счетных образцов: соосаждение с редкоземельными элементами-носителями и электролитическое осаждение.

Для определения количественного осаждения использовался образцовый радионуклидный раствор плутония – ²⁴²Pu, производства государственной корпорации «Росатом» ФГУП «НПО Радиевый институт им. Хлопина». Экспериментальная оценка эффективности осаждения ²⁴²Pu проводилась прямыми измерениями на альфа-спектрометре *Alpha-Analist* 7401 фирмы *CANBERRA (США)*.

Получение счетного образца для альфаспектрометрических измерений методом соосаждения изотопов плутония с редкоземельными элементами-носителями

Суть метода соосаждения лежит в выделении малорастворимого соединения, присутствующего в микроконцентрации, с осадком нерастворимого соединения макрокомпонента. Наиболее часто для соосаждения ТУЭ используют следующие реагенты: фториды лантаноидов (NdF₃, LaF₃, CeF₃), Fe(OH)₂ или Fe(OH)₃, фосфаты (Ca₃(PO₄)₂, BiPO₄), кальций оксалат (CaC₂O₄) [2].

При получении счетного образца методом соосаждения в данной работе ²⁴²Pu осаждали с небольшим количеством Nd (0,05 мг/мл) в виде фторидов с добавлением фтористоводородной кислоты [3]. Далее осадок отделяли методом фильтрования через мембранный фильтр с размером пор 0,1 мкм. Экспериментальная фильтровальная установка изображена на рисунке (рисунок 1).

Фильтр промывался дистиллированной водой, извлекался из разборной воронки, высушивался на фильтровальной бумаге и при помощи двухстороннего скотча укреплялся на металлической подложке для измерений на альфа-спектрометре.

Выход ²⁴²Pu, полученный данным методом, варьирует от 60% до 80%. В процессе фильтрации зачастую образуются белые хлопья или помутнение раствора, что приводит к затруднению фильтрации. Метод соосаждения недорог, но имеет ряд недостатков, один из них, но самый важный – наличие немономолекулярного слоя.

Получение счетного образца для альфаспектрометрических измерений методом электролитического осаждения изотопов плутония

Способ электролитического осаждения заключается в следующем: изотопы плутония, находящиеся в

растворенном состоянии в растворе электролита, под действием электрического тока осаждаются на диске из нержавеющей стали, который выступает в качестве катода. Анод – платиновая проволока. На полноту осаждения влияет множество факторов, основные из них – напряжение и сила тока, конструкция электролитической ячейки, время проведения процесса, состав электролита [4, 5].







б)

Рисунок 1. Экспериментальная фильтровальная установка: фильтровальная воронка (а); фото установки в сборе (б)

Геометрия электролитической ячейки определилась как двухкамерный цилиндр диаметром 2,7 см, высотой 4 см, в верхнюю камеру которого заливается электролит объемом 10 см³, а в нижней камере лицевой стороной к электролиту находится круглая подложка (катод) из нержавеющей стали, закрывающая собой круглое отверстие в дне верхней камеры площадью 1,3 см².

Специалистами Института радиационной безопасности и экологии была разработана и сконструирована установка для электролитического осаждения изотопов плутония, конструкция которой показана на рисунке 2.

Для построения зависимостей скорости счета от силы тока и от времени использовался трассер – раствор радионуклида плутония – 242. Трассер помещался в электролитическую ячейку, которая заполнялась 10 мл водного раствора электролита, содержащего два наименее химически агрессивных компонента: 1 $M NH_4CL/0,01 M (NH_4)_2 C_2O_4$ с pH=2,5.





Рисунок 2. Экспериментальная установка для электролитического осаждения изотопов Ри: чертеж установки в разрезе (a); фото установки (б)

Для определения оптимального значения силы тока выбрано фиксированное значение времени осаждения равное 1 часу. Выбраны также значения тока электролиза равные 400–1600 мА, при которых осаждался ²⁴²Pu (трассер). Расчет электрохимического выхода (*X*) изотопа плутония ²⁴²Pu осуществлялся согласно выражению:

$X = N/\epsilon Amp$,

где: N – скорость счета в окне регистрации ²⁴²Pu; *Атр* – активность трассера, внесенного в электролит перед осаждением; ε – эффективность регистрации детектора.

Значение эффективности регистрации равное 0,3 было взято из паспорта прибора. Данное значение эффективности соответствует случаю, когда источник в измерительной камере располагается на минимальном расстоянии от детектора. Поэтому все измерения проводились при фиксированном расстоянии «источник-детектор».



Рисунок 3. График зависимости скорости счета от силы тока

Анализ зависимости скорости счета от тока электролиза (рисунок 3) показывает, что максимальная скорость счета имеет место при токе осаждения равном 1400 мА.

Таким образом, приведенные результаты дают возможность сделать вывод о том, что для получения качественных счетных образцов с выбранной электролитической ячейкой необходимо использовать время осаждения равное 1 часу и силу тока 1300– 1400 мА.

В свою очередь при полученном фиксированном значении тока электролиза (плотности тока) необходимо исследовать зависимость скорости счета осажденного ²⁴²Ри от времени осаждения. Для изучения данной функции были выбраны значения времени осаждения трассера равные 30, 40, 50, 60 и 70 минут. Осаждение проводилось при фиксированном токе электролиза, равном 1400 мА.

Результаты экспериментальных данных, иллюстрирующие зависимость скорости счета от осаждаемого ²⁴²Pu% от длительности электролиза при токе 1400 мА, представлены на графике (рисунок 4).



Рисунок 4. График зависимости скорости счета от времени осаждения

Как видно из графика, по истечении одного часа продолжать электролиз дальше не имеет смысла, поскольку к этому времени имеет место практически максимальный выход ²⁴²Pu, при данной скорости счета определенный как 100%. Во всех вышеизложенных экспериментальных исследованиях по определению оптимальных параметров электролитического осаждения использован оксолатно-аммонийный электролит. Для сравнительной оценки состава электролита проведены дополнительные исследования с применением 1 М H₂SO₄ с pH = 3,2. Осаждение проводилось про фиксированном значении силы тока – 1400 мА. Результаты представлены в виде графика (рисунок 5).



Рисунок 5. Электролитическое осаждение ²⁴²Ри в 1 M H₂SO₄

Таким образом, результаты исследования показали, что для полного осаждения изотопов плутония время увеличивается до 80 минут. Данный факт позволяет сделать выводы о том, что состав оксолатноаммонийного электролита наиболее оптимальный для проведения электролитического осаждения Pu.

Как отмечалось выше, в процессе подготовки счетного образца методом электролитического осаждения огромное значение имеет стабильность напряжения. Проведена сравнительная оценка результатов химического выхода изотопов плутония образцов почвы, полученных на разных электролитических установках (рисунок 6). В состав одной установки входил блок питания HYKC–20A со стабильностью напряжения $10\pm1,5$ В. В состав другой установки, входил блок питания E5–49M со стабильностью напряжения $10\pm3,1$ мВ.

Из графиков, изображенных на рисунке, видно существенную разницу химического выхода. Результат с высоким процентом химического выхода встречается в разы чаще для образцов, полученных на электролитической установке с высоко стабилизированным напряжением.

Для выбора наиболее подходящего метода получения счетного образца для α-спектрометрического определения изотопов плутония была проведена сравнительная оценка двух рассмотренных методов – соосаждение с РЗЭ и электролитическое осаждение (рисунок 7). Тем и другим методом было проведено по 10 параллельных осаждений.

ВЫБОР ОПТИМАЛЬНОГО МЕТОДА ПОЛУЧЕНИЯ СЧЕТНОГО ОБРАЗЦА ДЛЯ АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКОГО ОПРЕДЕЛЕНИЯ ИЗОТОПОВ ПЛУТОНИЯ



Рисунок 6. Результаты сравнительной оценки химического выхода изотопов плутония образцов почвы, полученных на электролитических установках с разной стабильностью напряжения: блок питания HYKC-20A (a); блок питания Б5-49М (б)

Исследования показали применимость двух методов получения счетных образцов для альфа-спектрометрических измерений изотопов плутония. В первом случае, средний химический выход составил 65%, во втором – 73%. В обоих случаях средний химический выход близок к 70%. Однако, при соосаждении изотопов плутония с РЗЭ количество результатов с выходом более 70% – 3 из 10. А при применении электролитического осаждения – 7 из 10.

Заключение

В результате проведенных экспериментальных исследований определена эффективность наиболее часто используемых методов получения счетных образцов изотопов плутония для альфа-спектрометрии (соосаждение с РЗЭ и электролитическое осаждение). Установлено, что несмотря на отдельные недостатки (затраты времени и наличие подходящего оборудования) наилучшие источники для альфа-спектрометрии (хорошо воспроизводимые, особо тонкие образцы с равномерным распределением вещества по площади активного слоя) получают электролитическим осаждением.



Рисунок 7. Результаты сравнительной оценки химического выхода изотопов плутония-242, полученных методом соосаждения с РЗЭ и электролитическим осаждением: соосаждение с РЗЭ (а); электролитическое осаждение изотопов плутония (б)

В качестве электролита выбран следующий состав – 1 М NH₄Cl/ 0,01 М (NH₄)₂ C₂O₄ с pH=2,5. При этом оптимальными параметрами проведения электролитического осаждения будут: сила тока – 1300– 1400 мА; время осаждения – 60 минут; геометрия электролитической ячейки – диаметр 2,7 см, высота 4 см, объем 10 см³. Также разработана и сконструирована улучшенная электролитическая установка с высоко стабилизированным напряжением, позволяющая получать одновременно несколько счетных образцов с высоким химическим выходом.

Исследования выполнены при поддержке Министерства образования и науки Республики Казахстан в рамках проекта грантового финансирования (номер проекта AP 05131530).

Литература

- 1. Астафуров, В. И. Определение плутония в объектах окружающей среды и биологических материалах / В. И. Астафуров, Н. А. Землянухина // Радиохимия. 1984. № 1. С. 119–133.
- 2. Мясоедов Б.Ф. Аналитическая химия трансплутониевых элементов // Наука. Москва, С. 167–182.
- 3. Павлоцкая Ф. И. Основные принципы радиохимического анализа объектов природной среды и методы определения радионуклидов стронция и трансурановых элементов // Журнал аналитической химии. 1997. Т. 52, № 2. С. 126–143.
- Довнар А. К., Н. В. Дударева, А. Б Кухтевич. Определение оптимальных условий для электроосаждения америция // Матер. 10 Межд. конф. «Сахаровские чтения 2010 г.: экологические проблемы XXI в.». — Минск. – 2010. – Ч. 2. – С. 31– 32.
- Довнар, А. К., А. Б. Кухтевич. Метод электролитического приготовления счетных образцов для альфа-спектрометрического определения изотопов плутония // Сб. тез. II Межд. конф. «Физические методы в экологии, биологии и медицине». – Львов – Ворохта. – Украина. – 2009. – С. 138–139.

ПЛУТОНИЙ ИЗОТОПТАРЫН АЛЬФА-СПЕКТРОМЕТРИЯЛЫҚ АНЫҚТАУ ҮШІН ЕСЕПТІК ҮЛГІНІ АЛУДЫҢ ОҢТАЙЛЫ ӘДІСІН ТАҢДАУ

И.О. Зверева, В.В. Каширский

КР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада, плутоний изотоптарын альфа-спектрометриялық анықтау үшін есептік үлгіні алудың ең көп таралған әдістері - сирек кездесетін жер элементтерін қатар тұндыру мен электролиттік тұндыру әдісі қарастырылған. Альфа-спектрометрия үшін ең жақсы көздер (жақсы көбейтілетін, аса жұқа үлгілер заттектің белсенді қабатының аумағы бойынша біркелкі бөлінетін) электролиттік тұндыру арқылы алынатындығы анықталды. Бұл әдіс үшін есептік үлгілерді алу процесінің оңтайлы параметрлері (ток күші, тұндыру уақыты, электролиттік ұяшық геометриясы) анықталды және электролиттің құрамы таңдалды. Кернеуінің тұрақтылығы жоғары жетілдірілген электролиттік қондырғы құрастырылды және әзірленді.

Кілт сөздер: плутоний, қатар тұндыру, сүзгілеу, сирек кездесетін жер элементтері, электролиттік тұндыру, электролит, химиялық шығу.

THE CHOICE OF AN OPTIMAL TECHNIQUE TO OBTAIN A COUNTING SAMPLE FOR THE ALPHA-SPECTROMETRIC DETERMINATION OF PLUTONIUM ISOTOPES

I.O. Zvereva, V.V. Kashirsky

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article addresses the most common techniques for obtaining a counting sample for the alpha-spectrometric determination of plutonium isotopes – co-precipitation with rare-earth elements and the electrolytic precipitation technique. It was found that the best source for alpha-spectrometry (well-reproduced, especially thin samples with a substance uniformly distributed over the area of the active layer) is obtained by electrolytic precipitation. Optimal parameters of the process to obtain counting samples (amperage, precipitation time, geometry of an electrolytic cell) were determined for this technique and electrolyte composition was chosen. An improved electrolytic unit with highly stabilized voltage was developed and constructed.

Keywords: plutonium, co-precipitation, filtration, rare-earth elements, electrolytic precipitation, electrolyte, chemical yield.

МЕТОДИКА РАСПОЗНАВАНИЯ СЕЙСМИЧЕСКИХ СОБЫТИЙ ПО КОМПЛЕКСУ ИНФРАЗВУКОВЫХ И СЕЙСМИЧЕСКИХ ДАННЫХ

Смирнов А.А., Мукамбаев А.С., Михайлова Н.Н.

Институт геофизических исследований, Курчатов, Казахстан

Представлена методика совместного использования сейсмических и инфразвуковых данных для распознавания природы регистрируемых событий и уточнения положения их эпицентров, основанная на поиске функции взаимной корреляции эталонных и текущих записей сейсмических станций с дальнейшей ассоциацией событийкандидатов с инфразвуковыми фазами. Опробование методики на материалах 7 месяцев регистрации промышленных взрывов в карьере Акбастау (Алматинская область) сейсмической станцией AS058-Курчатов (KURK) и двумя инфразвуковыми станциями: в Курчатове (KURIS) и Маканчи (MKIAR) показало ее высокую надежность.

Введение

Система мониторинга взрывов разной природы и землетрясений нацелена на оперативное обнаружение событий, высокоточную параметризацию их источников, определение природы событий (распознавание). Казахстанская система мониторинга, находящаяся под оперативным управлением Института геофизических исследований (ИГИ), включает станции двух технологий - сейсмической и инфразвуковой. При этом, часть станций входит в международные, глобальные системы, тогда как некоторые станции включены только в национальную систему. В последние годы меняется базовое техническое обеспечение системы мониторинга, которое влечет за собой изменение программного обеспечения обработки сейсмических и геофизических данных, разработку новых методик распознавания природы событий с использованием как текущих регистрируемых событий, так и исторических оцифрованных данных.

Одним из результатов работы казахстанской системы мониторинга является сводный бюллетень событий, создаваемый по данным станций двух применяемых геофизических технологий. В его заключительной форме должны быть представлены распознанные источники - землетрясения, промышленные и ядерные взрывы. Все эти события могут являться угрозой для существующих на территории Казахстана и приграничных с ним государств населенным пунктам, промышленным объектам, а также инфраструктуре разрабатываемых месторождений. Обработку данных, поступающих от сейсмических и инфразвуковых станций, входящих в национальную систему мониторинга землетрясений и взрывов, выполняет Центр данных Института геофизических исследований.

ИСПОЛЬЗУЕМЫЕ МАТЕРИАЛЫ

Сеть стационарных сейсмических станций ИГИ [1] в настоящее время состоит из пяти сейсмических групп международного уровня и восьми трехкомпонентных станций (рисунок 1). При составлении сейсмического бюллетеня (KNDC) дополнительно используются данные станций некоторых других стран и организаций. В режиме реального времени поступают данные станций из Кыргызстана, Туркменистана, России. Из Сейсмологической опытно-методической экспедиции (СОМЭ) МОН РК поступают таблицы параметров зарегистрированных сейсмических фаз за каждые сутки.



сейсмические группы ИГИ; 2 – трехкомпонентные станции ИГИ;
 инфразвуковые станции ИГИ; 4 – сейсмические станции СОМЭ МОН
 PK; 5 – сейсмические станции ИС КР; 6 – сейсмическая группа Алибек,
 Туркменистан; 7 – сейсмическая и инфразвуковая группа Залесово (Россия)

Рисунок 1. Расположение сейсмических станций ИГИ и других организаций, данные которых используются при создании бюллетеня KNDC

Ежегодно станциями на территории Центральной Азии регистрируется и обрабатывается около 20 000 сейсмических событий, из которых примерно 5 000 составляют взрывы разной природы, главным образом, промышленные карьерные. При обработке зарегистрированных событий не делается различия между событиями разной природы, для них проводится полная обработка с определением всех параметров, необходимых для составления сейсмического бюллетеня.

На рисунке 2 показано соотношение количества землетрясений и взрывов в бюллетенях KNDC за 2004–2019 гг. Видно, что это соотношение довольно стабильно, но в последние годы наблюдается тенденция увеличения доли взрывов в общем объеме регистрируемых событий.



и взрывов по годам в бюллетене KNDC

Распределение эпицентров зарегистрированных сейсмических событий на исследуемой территории представлено на рисунке 3. В [2] показано, что на территории Казахстана имеются области, где сейсмичность взрывов намного превышает сейсмичность землетрясений, а выделившаяся суммарная сейсмическая энергия взрывов сопоставима или даже превышает таковую у землетрясений.

Большое количество событий, совпадающих или близких к карьерам, является карьерными взрывами, однако. известны случаи, когда рядом с карьерами происходят землетрясения, даже довольно сильные, которые на первом этапе обработки принимаются за взрывы. Например: Карагандинское землетрясение 2014 г., Экибастузское землетрясение 2019 г. и другие.

Распознать, а порой и доказать природу источника, является непростой задачей, тогда как это очень важно для дальнейших работ по оценке сейсмической опасности. Требуется, чтобы, в конечном счете, каталог землетрясений был очищен от взрывов и состоял только из природных событий. Поскольку получить информацию о проведенных взрывах от горнодобывающих предприятий удается не всегда, для распознавания часто используются только сейсмические методы. Обычно для распознавания сейсмических событий по записям сейсмических станций изучается следующий комплекс параметров: 1 – координаты эпицентра события и их близость к известным карьерам; 2 – глубина события; 3 – особенности волновой картины записей; 4 – время события относительно суток; 5 – диапазон энергетических классов; 6 - спектральное отношение амплитуд в различных волновых группах;7 - характеристики спектров разных волновых групп; 8-распределение знаков первых вступлений и механизмы очага.

Каждый из перечисленных параметров в отдельности не является надежным признаком для верного разделения сейсмических событий на взрывы и землетрясения. Выявление нескольких признаков в комплексе, например, близость местоположения эпицентра события к известному карьеру, малая глубина события, характерная запись этого события инфразвуковой станцией, а также время события, относящееся к рабочему времени суток, повышает шанс отнести зарегистрированное сейсмическое событие к классу карьерных взрывов.



🗢 – землетрясение; 🗢 – взрыв; 🛠 – карьер

Рисунок 3. Эпицентры землетрясений и взрывов, зарегистрированных за 2006-2016 гг.

Наибольшую эффективность при распознавании показало применение спектрального отношения поперечных и продольных волн и особенностей волновой картины записи события. В качестве дополнительного критерия используется характерный для каждого карьера диапазон энергетических классов. Следует отметить, что конкретные количественные критерии распознавания могут различаться для различных регионов Казахстана, для разных станций регистрации и разных карьеров, что обусловливает необходимость специального изучения и поиска новых критериев распознавания. В данной статье для решения задачи распознавания привлечены инфразвуковые данные.

В составе сети мониторинга ИГИ в настоящее время работают три инфразвуковые станции: Актюбинск (IS31), 2001 г., входящая в международную систему мониторинга Организации по Договору о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний (МСМ ОДВЗЯИ); Курчатов (KURIS), 2010 г., восстановленная вблизи ранее действовавшей инфразвуковой станции; Маканчи (MKIAR), 2016 г., построенная в рамках договора с Центром прикладных технологий воздушных сил (AFTAC, США). В Центр данных в режиме реального времени поступают также данные инфразвуковой группы Залесово (IS46), расположенной на территории России, являющейся станцией МСМ ОДВЗЯИ.

Инфразвуковые станции часто регистрируют сигналы от карьерных взрывов. На рисунках 4 и 5 приведены примеры регистрации и обработки записи взрыва на угольном карьере Каражыра Семипалатинского испытательного полигона 14.06.2011 г. станциями в Курчатове – сейсмическими KURBB, KURK (рисунок 4), и инфразвуковой KURI (рисунок 5).



Рисунок 4. Результаты регистрации взрыва на угольном карьере Каражыра (СИП) 14.06.2011 г. сейсмическими станциями KURBB и KURK



Рисунок 5. Результаты регистрации взрыва на угольном карьере Каражыра (СИП) 14.06.2011 г. инфразвуковой станцией KURIS (четыре нижние трассы соответствуют четырем элементам группы)


Рисунок 6. Взаимное расположение изученных карьеров и станций казахстанской сейсмоакустической сети

Содержание методики

Многие события, являющиеся карьерными взрывами, включаются одновременно и в сейсмические бюллетени событий, и в инфразвуковые бюллетени детектирований. Методика распознавания природы событий, включенных в бюллетени, по комплексу сейсмических и инфразвуковых данных, предназначена повысить степень уверенности распознавания взрывов, произведенных в подавляющем большинстве на активно действующих карьерах территории Казахстана, а также значительно повысить точность их локализации за счет надежной привязки события к конкретному карьеру.

На рисунке 6 показано взаимное расположение изученных в процессе разработки методики карьеров на территории Казахстана и станций сейсмоакустической сети.

Суть методики заключается в следующем. Для двенадцати карьеров ранее получены волновые формы сейсмических записей конкретных сейсмических станций, а также волновые формы инфразвуковых записей на станциях инфразвуковой сети. Было установлено, что запись сейсмической фазы каналовой волны Lg от взрывов для каждого карьера на конкретной станции имеет специфическую форму. При этом, форма записей этой фазы от разных взрывов, зарегистрированных одной и той же станцией на одной и той же компоненте для одного и того же карьера, очень похожи друг на друга [3]. В [3] это свойство волновых форм используется для уточнения положения источников при сейсмическом мониторинге. В данном случае это свойство используется в качестве критерия распознавания. Достоверность распознавания повышается за счет поиска и использования соответствующей инфразвуковой фазы.

Для того, чтобы определить, является ли новое зарегистрированное событие взрывом в пределах одного из изученных ранее карьеров, нужно выполнить следующие шаги (рисунок 7):

 создается база данных эталонных записей – волновых форм, для ряда карьеров. Это – сейсмические записи взрывов на точно установленных карьерах;

 создается сейсмический бюллетень по данным сейсмических станций за определенный период времени;

 проводится сравнение с эталонной формой текущих сейсмических записей на той станции, которая использована как источник эталонной волновой формы. Сравнение ведется путем нахождения функции взаимной корреляции ФВК «эталонной формы» с текущими записями соответствующего канала. Расчет производится с использованием ПО *GeoTool* [4, 5];

 создается бюллетень инфразвуковых детектирований по данным инфразвуковых станций;

 проводится ассоциация событий из сейсмического бюллетеня, набора событий кандидатов и бюллетеня инфразвуковых фаз.

Данная методика не работает для карьеров, имеющих очень большие линейные размеры, т.к. в этом случае волновые формы сейсмических фаз от взрывов в разных частях одного и того же карьера могут существенно различаться. Теоретически это ограничение можно обойти по мере накопления большого количества записей событий в этих карьерах. Имея большое количество событий для больших карьеров, можно выделить не одну, а несколько эталонных записей, каждая из которых соответствует определённому участку большого карьера, и далее использовать эти эталонные записи как и в случае «небольших» карьеров.



Рисунок 7. Блок-диаграмма методики распознавания сейсмических событий по комплексу инфразвуковых и сейсмических данных

Опробование методики распознавания

Методика опробована на сейсмических событиях вблизи карьера Акбастау в Восточно-Казахстанской области, зарегистрированных сейсмической станцией KURK (компонента N-S). На рисунке 8 показана «эталонная форма» для фазы Lg записей взрывов в карьере Акбастау, зарегистрированных той же станцией на той же компоненте, то есть, для той же пары «источник – приёмник».



Рисунок 8. «Эталонная форма» фазы Lg записей взрывов в карьере Акбастау, зарегистрированных станцией KURK (компонента N-S), полученная с использованием пакета программ GISMO [6]

«Эталонная форма» сравнивалась с суточными фрагментами записи того же канала той же станции. Для каждого из этих фрагментов был найден глобальный максимум. Затем ко времени, когда наблюдались максимумы ФВК, прибавлялись времена пробега от карьера до каждой из инфразвуковых станций (KURIS и MKIAR), рассчитанных для фазовой скорости 0,3 км/с. Затем в автоматических бюллетенях инфразвуковых детектирований для этих станций был произведен поиск сигналов, имеющих времена, совпадающие с расчётными, и близкие азимуты. Тестовый поиск проведен в записях с 24.09.2017 г. по 30.04.2018 г. Всего было найдено 211 пиков ФВК. Для 96 пар «источник – приемник»/ «карьер – станция» были найдены инфразвуковые сигналы. На рисунке 9 показана зависимость отношения количества найденных сигналов к количеству предсказанных от значения ФВК между эталонной формой и записью N-S компоненты станции KURK для этих событий. Всего было найдено 74 взрыва, о которых с высокой степенью уверенности можно сказать, что они произведены в карьере Акбастау.

Как видно из рисунка 9: 1) у событий-кандидатов, имеющих высокие значения ФВК, относительное количество найденных инфразвуковых фаз существенно больше, чем у событий-кандидатов, где значение ФВК ниже; 2) относительное количество инфразвуковых фаз существенно увеличивается для событий, имеющих значения ФВК 0,75 и выше.

Таким образом, проведенное тестирование новой методики показало ее работоспособность. Найдено эмпирическое прогнозное пороговое значение ФВК, равное 0,75. При таком значении ФВК распознавание можно считать надежным. Дальнейшие исследования для других карьеров покажут, является ли это эмпирическое значение универсальным или оно индивидуально для каждого карьера. Применение технологии к данным мониторинга за изучаемый период позволило обнаружить 74 события, которые с высокой вероятностью являются взрывами в карьере Акбастау. Из них 31 событие было включено в сейсмический бюллетень. Удалось установить с высокой точностью положение эпицентра этих взрывов в карьере.



—для взрывов в карьере Акбастау; ……… скользящее среднее



Однако методика имеет некоторые ограничения. Во-первых, она не подходит для карьеров, где в период инструментальных наблюдений произведено относительно малое количество взрывов или взрывы ранее не были зарегистрированы сейсмическими станциями. Во-вторых, она не позволяет отследить все взрывы в известных карьерах, т.к. используются инфразвуковые сигналы, а их регистрация может быть невозможна при определенном состоянии атмосферы. В-третьих, методика с меньшей достоверностью позволяет распознавать взрывы в очень больших по размерам карьерах (Экибастуз, Молодежный, Каражыра). В таких случаях необходимо привлекать в комплексе другие параметры и критерии распознавания природы источников, например, знаки первых вступлений, механизмы очагов и др.

Тем не менее, как показало опробование методики на реальных данных, она успешно работает и может быть использована на практике. Методика позволяет распознать достаточно большое количество событий и существенно повысить точность локализа-

Литература

ции событий на десятки километров. Кроме того, она может быть использована, например, при создании базы данных эталонных событий. Зная, где расположены активные по взрывной деятельности карьеры, используя результаты параметризации сейсмических событий, можно распознать, является ли событие взрывом или землетрясением. Для взрывов можно однозначно определить, был ли произведен взрыв в карьере или за его пределами.

Заключение

Новая методика и созданная на ее основе технология распознавания природы событий на основе комплекса сейсмических и инфразвуковых данных позволяют использовать эталонные записи, найденные для активных карьеров Казахстана, для целей распознавания принадлежности обнаруженного события к классу взрывов и определения его точного местонахождения. Опробование методики на материалах одного из карьеров показало свою работоспособность и высокую эффективность.

- Mikhailova, N.N. Monitoring System of the Institute of Geophysical Research of the Ministry of Energy of the Republic of Kazakhstan / N.N. Mikhailova, I.N. Sokolova // Summary of the Bulletin of the International Seismological Centre. 2016. – January–June. – Volume 53, Issue 1. – 2019. – P. 27–38.
- Мукамбаев, А.С. Сейсмичность взрывных работ на территории Республики Казахстан / А.С. Мукамбаев, Н.Н. Михайлова // Вестник НЯЦ РК. – 2017. – Вып. 4. – С. 124–130.
- Slinkard, M Multistation Validation of Waveform Correlation Techniques as Applied to Broad Regional Monitoring / M. Slinkard, D. Schaff, N. Mikhailova, S. Heck, Ch. Young, P. G. Richards // Bulletin of the Seismological Society of America. – 2014. – Vol. 104, No. 6. – P. 2768–2781, doi: 10.1785/0120140140.
- 4. Coyne, J. IDC Documentations Geotool Software User Tutorial / J. Coyne, K. Clark, S. Lloyd. 16 July 2003. 59 p.
- Coyne, J.M. GEOTOOL sourcebook / J.M. Coyne, I. Henson // Technical Report C95-01.DAPRA Contract F19628-93-C-0094.SAIC-Teledyne Browne Engineering. – 1995.
- 6. GISMO documentation [Электронный ресурс]: http://www.giseis.alaska.edu/Seis/EQ/tools/GISMO/

ИНФРАДЫБЫСТЫҚ ЖӘНЕ СЕЙСМИКАЛЫҚ ДЕРЕКТЕР КЕШЕНІ БОЙЫНША СЕЙСМИКАЛЫҚ ОҚИҒАЛАРДЫ ТАНУ ӘДІСТЕМЕСІ

А.А. Смирнов, А.С. Мұқамбаев, Н.Н. Михайлова

Геофизикалық зерттеулер институты, Курчатов, Қазақстан

Тіркелген оқиғалардың табиғатын тану және олардың эпиорталықтарының жатысын анықтау үшін, сейсмикалық станциялардың эталондық және ағымдағы жазбаларын өзара корреляциялау функциясын іздестіруінде және инфрадыбыстық фазалары бар кандидат-оқиғаларды одан әрі ассоциациялауында негізделген, сейсмикалық және инфрадыбыстық деректерді бірлесіп пайдалану әдістемесі ұсынылған. Ақбастау карьеріндегі (Алматы облысы) өнеркәсіптік жарылыстарды AS058-Курчатов (KURK) сейсмикалық станциясы мен екі инфрадыбыстық станцияларымен – Курчатов (KURIS) және Маканчи (MKIAR) – тіркеудің 7 айлық материалдарында әдістемені сынамалауы оның жоғары сенімділігін көрсетті.

METHODOLOGY OF IDENTIFICATION OF SEISMIC EVENTS BASED ON A NUMBER OF INFRASOUND AND SEISMIC DATA

A.A. Smirnov, A.S. Mukambayev, N.N. Mikhailova

Institute of Geophysical Research, Kurchatov, Kazakhstan

The paper presents a methodology of a joint use of seismic and infrasound data to identify the nature of recorded events and to clarify their epicenters; the methodology is based on the search function of mutual correlation of ground truth and current records of seismic stations and further association of events-candidates with infrasound phases. The methodology was tested on materials of 7 months' registration of industrial explosions at Akbastau quarry (Almaty region) by AS058-Kurchatov (KURK) seismic station and two infrasound stations: in Kurchatov (KURIS) and Makanchi (MKIAR); the testing showed its high reliability.

УДК 550.34

КАРЬЕРНЫЕ И СТРОИТЕЛЬНЫЕ ВЗРЫВЫ В РАЙОНЕ ГОРОДА АЛМАТЫ КАК ЭТАЛОННЫЕ СОБЫТИЯ В ЗАДАЧАХ СЕЙСМИЧЕСКОГО МОНИТОРИНГА

Аристова И.Л., Соколова И.Н.

Институт геофизических исследований, Курчатов, Казахстан

На основе данных по эталонным взрывам (с хорошо определенными параметрами), произведенными в районе г. Алматы, построен новый годограф основных сейсмических региональных фаз. Проведено сравнение годографа с другими скоростными моделями, которые используются для локализации событий на территории Северного Тянь-Шаня. Показано, что при использовании нового годографа размеры эллипсов ошибок локализации сейсмических событий меньше, чем при использовании других годографов.

Введение

Для задач мониторинга сейсмических событий важное значение имеют базы данных по так называемым эталонным событиям. Это события с хорошо известными параметрами источника, такими как: время в очаге t₀, координаты эпицентра (широта и долгота), глубина (если это взрывы в скважинах - то глубина заложения заряда), а также мощность взрыва. В зависимости от полноты сведений об источнике, эталонные события разделяются на классы по точности определения параметров очага. Эталонные события, с одной стороны, служат основой изучения скоростных характеристик среды, построения годографов сейсмических волн. С другой стороны, по эталонным событиям производится оценка точности локализации по различным скоростным моделям и различным методам, это наиболее реальная характеристика возможной погрешности решения при поиске источника по записям сейсмических сетей.

Вопрос сбора данных об эталонных взрывах постоянно находится в сфере внимания в Центре данных ИГИ МЭ РК. В частности, к эталонным взрывам относились калибровочные взрывы на территории бывшего Семипалатинского полигона, произведенные на площадках Балапан и Дегелен в 1997-2002 гг. [1]. Данные по этим взрывам систематизированы, по ним построены обобщенные годографы для большой территории Казахстана, рассчитаны энергетические и магнитудные характеристики [2, 3]. В КНЦД на регулярной основе составляется оперативный бюллетень для территории Центральной Азии, обрабатываются сильные удаленные события. В связи с этим, в рутинной практике для определения положения гипоцентра сейсмического события по всей сети станций, для далеких и региональных событий, используется универсальный годограф IASPEI91 (International Association of Seismology and Physics of the Earth's Interior) [4]. Для решения различных практических задач и научных исследований применяются другие, региональные годографы и скоростные модели, позволяющие получать более точные решения по источникам сейсмических волн [3]. В ряде случаев, например, для оценки сейсмической опасности г. Алматы, функционирования системы раннего предупреждения о землетрясениях и др., необходимо точное знание положения гипоцентра, для локализации источника нужно использовать региональный годограф, более точно отражающий особенности глубинного строения территории, локальные неоднородности в литосфере. В статье приведены данные об эталонных взрывах в районе города Алматы, построенные с использованием этих данных годографы различных фаз сейсмических волн, а также примеры сравнительного анализа использования разных годографов при локализации эталонных взрывов. По литературным источникам были установлены хорошо описанные взрывы при строительстве селезащитной плотины в Медео и взрывы в карьере Котур-Булак близ г. Алматы, по записям которых на сейсмических станциях можно построить локальный годограф.

Использованные данные

Селезащитная плотина Medeo в русле реки Малая Алматинка (в высокогорном урочище Медеу вблизи г. Алматы) создавалась в 1966–1967 гг. с использованием уникальных направленных взрывов большой мощности. Большое внимание было уделено исследовательской работе, сопровождающей эти взрывы. Регистрацию взрывов вели как в ближней, средней так и в дальней зоне. Все взрывы в Медео можно считать эталонными, для них известно точное время проведения, координаты, имеются записи по многим станциям. В таблице 1 представлены параметры взрывов, записи которых могут быть использованы для построения годографов.

Таблице	Таблица 1. Параметры взрывов в Медео для создания										
	плотины										

Дата	Время	Широта, с.ш.	Долгота, в.д.	mb	Мощность заряда, т	Кол-во зарядов
21.10.1966	04:59:59.1	43,1512	77,0665	5,2	1689	4
21.10.1966	05:00:02.7	43,1513	77,0676	5,3	3604	1
14.04.1967	05:00:08.6	43,1514	77,0589	5,0	1121	5
14.04.1967	05:00:10.8	43,1514	77,0582	5,0	2825	5
20.11.1973	05:00:21.5	43,1467	77,0575	-	200	_

Примечание – координаты взрывов уточнены Великановым А.Е. по космоснимкам с большим разрешением.

Первый, правобережный взрыв, произведен 21 октября 1966 г. Он был двойным. Вначале взорваны 4 заряда общим весом 1690 т, через 3,6 с – основной заряд весом 3600 т (рисунок 1). Второй, левобережный взрыв, осуществлен 14 апреля 1967 г. Заряды взрывчатого вещества размещались в 10 камерах. Взрыв также был двойным, первый из них состоял из пяти зарядов общим весом 1117 т (все пять зарядов взорваны практически одновременно), второй взрыв состоял также из пяти зарядов весом 2825 т (произведен через 2,2 с после первого).



Рисунок 1. Медео. Первый направленный взрыв 21 октября 1966 г.

В течение 1972–1976 гг. вблизи плотины, для ее наращивания, было проведено большое количество относительно слабых взрывов. Самый сильный из них, мощностью ~200 т, зарегистрирован 23 ноября 1973 г. (с K=10,8) [6].

Карьер Котур-Булак вблизи Алматы (рисунок 2) очень компактный, размером в длину ~800-900 м, в ширину ~450 м (координаты 43,27804 с.ш. и 77,0779 в.д.). Взрывы, произведенные на карьере, можно считать эталонными событиями GT1. Рядом с карьером на расстоянии 4,6 км находится сейсмическая станция КОТЅ (Котур-Булак) СОМЭ МОН РК, которая работает с 2003 г., поэтому записи взрывов отбирались с 2003 г. Для построения годографа взрывов карьера Котур-Булак были использованы данные совместного бюллетеня KNDC и СОМЭ МОН РК. В предыдущих работах время взрыва t0 было рассчитано от опорной станции Котур-Булак, что привело к завышению скоростей [5]. Были уточнены координаты взрывов на карьере по космоснимкам (рисунок 2). Для задачи построения годографа выбирались те взрывы, которые были зарегистрированы станцией Котур-Булак и большим количеством других сейсмических станций. Всего для построения годографа были отобраны и обработаны записи 66 Котур-Булакских взрывов за 2003-2016 гг. (таблица 2).



Рисунок 2. Геоморфологическая карта и космоснимок района карьера Котур-Булак

Таблица 2. Взрывы в карьере К	отур-Булак,
использованные для построени	я годографа

Дата	Время	Дата	Время	Дата	Время
08.05.2003	6:31:00	07.10.2005	7:31:17	24.08.2007	7:31:47
23.07.2003	11:31:13	05.11.2005	10:31:12	29.08.2007	7:31:32
09.08.2003	7:31:07	10.11.2005	10:31:16	20.09.2007	7:31:05
21.08.2003	7:31:14	06.12.2005	11:31:02	15.10.2007	9:31:04
10.09.2003	9:31:02	26.12.2005	10:31:13	30.10.2007	10:31:44
11.10.2003	11:31:00	06.04.2006	13:31:10	14.04.2008	8:31:22
30.10.2003	10:31:51	16.05.2006	11:31:25	16.07.2008	7:31:44
11.12.2003	7:31:49	31.05.2006	12:31:25	29.10.2008	3:31:29
24.01.2004	8:31:45	03.07.2006	15:31:13	12.12.2008	9:31:16
25.02.2004	10:31:28	06.07.2006	7:31:38	25.04.2009	7:31:50
31.03.2004	10:31:22	30.11.2006	10:31:03	21.07.2009	11:31:55
06.05.2004	13:31:14	05.12.2006	6:31:45	28.10.2009	10:31:26
16.06.2004	10:31:14	29.12.2006	6:31:07	17.08.2010	6:31:35
29.06.2004	8:31:04	07.02.2007	6:31:53	21.12.2010	9:31:45
06.10.2004	12:31:54	07.03.2007	6:31:27	21.04.2011	8:31:26
11.02.2005	9:31:25	07.05.2007	12:31:22	26.09.2011	9:31:29
17.03.2005	7:31:29	29.06.2007	6:31:03	19.01.2013	7:31:23
21.06.2005	6:31:44	06.07.2007	7:31:29	21.05.2013	13:31:33
15.09.2005	6:31:58	12.07.2007	7:31:57	30.07.2013	10:31:46
16.09.2005	6:31:33	03.08.2007	7:31:36	16.05.2014	10:31:55
26.09.2005	8:31:14	07.08.2007	12:31:58	31.10.2014	9:31:07
30.09.2005	6:31:02	20.08.2007	9:31:46	31.08.2016	3:31:46

ПОСТРОЕНИЕ ГОДОГРАФА ПО ЭТАЛОННЫМ ВЗРЫВАМ

Для построения годографа были использованы аналоговые сейсмограммы из архива КСЭ ИФЗ АН СССР взрывов в Медео, описанные в [5]. Для первого взрыва 1966 г. проведены 47 замеров различных фаз, для взрыва 1967 г. – 50 замеров и для третьего, наиболее слабого, – 26. Определенную сложность в обработке создавали двойные взрывы из-за невозможности в некоторых случаях выделить фазы второго взрыва. Были уточнены координаты станций, что позволило улучшить качество годографа. Так, например, у станции Рыбачье до 1962 г. координаты станции были: широта – 42,45 с.ш., долгота – 76,0833 в.д., а в период взрывов станция имела следующие координаты: широта – 42,127, долгота – 77,183.

На рисунке 3 приведено расположение эпицентров взрывов и зарегистрировавших их сейсмических станций, на рисунке 4 – графики зависимости времени пробега региональных фаз от расстояния по результатам регистрации взрывов в Медео. Из рисунка 4 видно, что не все расстояния являются предста-



Рисунок 3. Расположение станций, записи которых использованы для построения годографа сейсмических волн по взрывам в Медео



Рисунок 4. Годограф сейсмических волн по взрывам в Медео

вительными, так, только по информации от взрыва Медео невозможно построить надежный годограф для фазы Sn. Поэтому годографы необходимо было дополнить результатами измерений времен пробега по другим эталонным взрывам, для чего и использованы взрывы карьера Котур-Булак, расположенного вблизи г. Алматы.

На рисунках 5, 6 показаны расположение карьера Котур-Булак и сейсмических станций, записи которых использованы для построения годографа и график времен пробега основных региональных сейсмических фаз в зависимости от эпицентрального расстояния для Котур-Булакских взрывов.

Для расчета сводных годографов были собраны все записи сейсмических станций, как для взрывов Медео, так и Котур-Булакских взрывов для эпицентральных расстояний от 10 до 1450 км (рисунок 7). В таблице 3 приведены уравнения времен пробега от расстояний для основных типов сейсмических волн Pn, Pg, Sg, Lg Sn и их скорости для совместного годографа Медео и Котур-Булак.



Рисунок 5. Расположение сейсмических станций, записи которых использованы для построения годографа, относительно карьера Котур-Булак



Рисунок 6. Годограф по сейсмограммам взрывов в карьере Котур-Булак

Фаза	Расстояние, км	Уравнение	Средняя скорость, км/с
Pn	220–1400	11,935+0,118∙∆	8,44
Pg	10–850	0,727+0,163·∆	6,15
Sg	10–220	1,639+0,285·∆	3,51
Lg	220-850	1,713+0,280∙∆	3,57
Sn	220–1450	1,187+0,212∙∆	4,71

Таблица 3. Зависимость времен пробега от расстояний для основных типов сейсмических волн по взрывам в Медео и карьере Котур-Булак



Рисунок 7. Сводный годограф по результатам регистрации взрывов в Медео и карьере Котур-Булак

Сравнение известных и новой скоростных сейсмических моделей

Для рассматриваемого района созданы и используются в разных задачах различные скоростные сейсмические модели [3, 5, 7–9]:

1. Скоростная модель, разработанная в Институте сейсмологии АН КазССР по результатам интерпретации и обобщения ретроспективных фондовых и опубликованных данных о глубинных сейсмических зондированиях по системе профилей (Шацилов В.И. [7]), используется в СОМЭ МОН РК с 1980 г. для определения координат гипоцентров (рисунки 8 и 9). Годограф (рисунок 9) рассчитан для глубин от 0 до 70 км.



Рисунок 8. Сейсмический скоростной разрез земной коры, созданный в ИС АН КазССР (Шацилов В.И. [7])



Рисунок 9. Годограф, созданный в ИС АН КазССР (Шацилов В.И. [7]) для глубины h=0 км

Сравнение регионального годографа Шацилова В.И. и осредненного для всей земли годографа IASPEI-91 показано на рисунке 10. Наблюдается значительное отличие годографа Шацилова от IASPEI-91, особенно для Lg-волн. Скорость волн по годографу Шацилова В.И. значительно превышает скорость волн по годографу IASPEI-91.



тодографы. Т – шацилова В.И. [7], 2 – КЗРЕТ-9Т [4]

Рисунок 10. Сопоставление годографов для глубины h=15 км

2. Годограф для территории Казахстана создан в Центре данных Института геофизических исследований для региональных эпицентральных расстояний 0-1500 км (Михайлова Н.Н. и др. [3]), по данным калибровочных химических взрывов, произведенных на территории Семипалатинского испытательного полигона (1997-2000 гг.) и ядерных (1964-1975 гг.). Обработка данных включала интерпретацию волновой структуры записей, определение времен вступлений различных сейсмических фаз в диапазоне расстояний от 0 до 1000 км. Анализ проведен по трем группам данных, различающихся эпицентральными расстояниями и соответственно волновой картиной на сейсмограммах. Первая группа – ближняя зона, $\Delta = 0-30$ км. Вторая группа – промежуточная зона, $\Delta = 50-300$ км, третья группа — дальняя зона (до 1000 км). Наиболее интересная и сложная часть годографа относится к диапазону расстояний 100-250 км, где происходит смена типов волн, вступающих первыми. На этих расстояниях расположены станции Каркаралинск и Баян-Аул. В Р-волнах наблюдается очень сложная картина: сначала - малоинтенсивное низкочастотное вступление, затем – высокочастотная Pn, максимальные колебания в Р-волнах связаны с Рд-волной. В группе S-волн сначала вступает волна Sn, отличающаяся в основном спектром от коды P, и самая интенсивная Lg-волна. Годограф построен для основных региональных фаз P, Pn, Pg, Sn, S, Lg для глубины 0 км (рисунок 11). На основе годографа для глубины 0 км были рассчитаны скоростные модели для разных глубин (рисунок 12). Этот годограф [3] широко применяется в практике создания сейсмического бюллетеня Центра данных для событий из районов Центрального и Восточного Казахстана.



Рисунок 11. Годограф для Центрального Казахстана, созданный в ИГИ МЭ РК (Михайлова Н.Н. и др. [3])



Рисунок 12. Сейсмический скоростной разрез земной коры для Казахстана (Михайлова Н.Н. и др. [3])

3. Трехмерная скоростная модель земной коры и верхней мантии Тянь-Шаня до глубин 200 км создана в Институте сейсмологии Национальной академии наук Кыргызской Республики (Сабитова Т.М., Адамова А.А. [8]) с использованием методов сейсмотомографии. Для создания модели использовались данные времен пробега Р- и S-волн от 1977 региональных землетрясений, 3579 телесейсмических землетрясений и от 27 подземных ядерных взрывов. На рисунке 13 показана скоростная модель, на рисунке 14 – годограф для региональных фаз. Скоростная модель Сабитовой Т.М. широко используется в практике для локализации событий из Кыргызстана и близлежащих территорий (юго-востока Казахстана и северо-запада Китая), однако для его построения были использованы данные только трех сейсмических станций на территории Казахстана: Хантау, Талгар и Подгорное [7]. Детально скоростную модель удалось построить для района южнее 43° с.ш., для района г. Алматы и Алматинской области скоростная модель не разрабатывалась.



Рисунок 13. Сейсмический скоростной разрез земной коры для территории Тянь-Шаня, созданный в ИС НАН КР



Рисунок 14. Годограф для Тянь-Шаня, созданный в ИС НАН КР (Сабитова Т.М. [8]

4. Годограф КСЭ ИФЗ АН СССР (Нерсесов И.Л. и Раутиан Т.Г. [9]) построен по так называемому Большому профилю в направлении Памир – р. Лена, протяженностью ~3500 км, пересекающему сейсмоактивные области Средней Азии, Казахстана, Алтая, Саян и Прибайкалья. Использованы данные 54 станций через 70–120 км по профилю, а также станций стационарной сети. Годограф (рисунок 15) построен для эпицентральных расстояний от первых сотен до 3500 км, поэтому волновая картина обработанных записей существенно варьировалась, различался набор типов волн для разных эпицентральных расстояний. Так, например, для расстояний более 2000 км измерялись времена вступления только Р-волн.



Рисунок 15. Годограф КСЭ ИФЗ АН СССР для глубины h=0 км (Нерсесов И.Л. и Раутиан Т.Г. [9])

Для сравнения годографов и выбора наиболее подходящего для исследуемой территории была проведена перелокализация эталонных сейсмических событий. После анализа годографов для тестирования были использованы следующие скоростные модели: годограф по данным эталонных взрывов Медео – Котур-Булак, годограф КСЭ ИФЗ АН СССР, годограф Сабитовой Т.М. для Северного Тянь-Шаня и годограф Михайловой и др. для Казахстана.

На рисунках 16, 17 показаны примеры перелокализации 2-х карьерных взрывов, произведенных на территории карьера Котур-Булак: 19.01.2013 (рисунок 16) и 31.08.2016 (рисунок 17).



годографов: 1 – новому (по калибровочным взрывам в Медео и карьере Котур-Булак); 2 – по [3]; 3 – по [9]; 4 – по [8]

Рисунок 16. Пример локализации события 19.01.2013 г. с использованием различных годографов

Литература



Эпицентры и эллипсы ошибок, полученные при использовании годографов: 1 – новому (по калибровочным взрывам в Медео и карьере Котур-Булак); 2 – по [3]; 3 – по [4]; 4 – по [8]

Рисунок 17. Пример локализации события 31.08.2016 с использованием различных годографов

При использовании нового годографа значительно уменьшился эллипс ошибок и улучшилось приближение расчетного положения эпицентра событий к истинному положению взрывов.

Заключение

В статье демонстрируется пример привлечения исторических материалов по эталонным событиям и современных данных по карьерным взрывам с хорошо известными параметрами для получения новых скоростных моделей для районирования территории по скоростным характеристикам. Это поможет в повышении эффективности мониторинга сейсмических событий, важной частью которого является локализация источников сигналов, зарегистрированных сейсмическими станциями.

Построен новый годограф для г. Алматы и его окрестностей. Проведено сравнение годографа с другими годографами, которые используются для локализации событий на Северном Тянь-Шане. Показано, что при использовании годографа по эталонным взрывам размеры эллипсов ошибок локализации стали меньше, чем при использовании других годографов. Полученные результаты можно будет использовать в практике локализации сейсмических событий, для моделирования системы раннего предупреждения г. Алматы, для оценки сейсмической опасности.

- Leith, W. Калибровочные испытания ДВЗЯИ на Семипалатинском испытательном полигоне. 1997–2000 гг. / W. Leith, I.J. Kluchko, C. P. Knowles, D.A. Linger, L. Gabriet, Н.Н. Беляшова, Ш.Т. Тухватулин, В.Н. Демин, В.Е. Коновалов // Вестник НЯЦ РК, 2000. – Вып. 2 (2). – С. 31–40.
- 2. Михайлова, Н.Н. Сравнение калибровочных взрывов Омега-2 и Омега-3 по сейсмическим данным на региональных расстояниях / Н.Н. Михайлова, И.Н. Соколова // Вестник НЯЦ РК, 2002. Вып. 2 (10). С. 36–45.
- Михайлова, Н.Н. Годограф сейсмических волн по результатам регистрации сигналов от химических взрывов / Н.Н. Михайлова, И.Л. Аристова, Т.И.Германова // Вестник НЯЦ РК, 2002. – Вып. 2 (10). – С. 46–54.

- 4. Kennett, B. IASPEI 1991. Seismological Tables / B. Kennett (editor) // Terra Nova. Australian National University, Research Schol of Earth Sciences, 1991 vol. 3, issue 2. P. 122–122.
- 5. Соколова, И.Н. Исторические сейсмические записи взрывов, проведенных для создания селезащитной плотины в Медео / И.Н. Соколова // Вестник НЯЦ РК. 2019. Вып. 2. С. 128–137.
- Гальперин, Е.И. Изучение сейсмического режима крупных промышленных центров / Е.И. Гальперин, И.Л. Нерсесов, Л.М. Воровский, Р.М. Гальперина, А.И. Чесноков. – М.: Наука, 1978. – 188 с.
- 7. Шацилов, В.И. Скоростные модели земной коры Казахстана / В.И. Шацилов [и др.]. Алматы: Евразия, 1993. 105 с.
- 8. Бакиров, А.Б. Земная кора и верхняя мантия Тянь-Шаня в связи с геодинамикой и сейсмичностью / А.Б. Бакиров (редактор). Бишкек: Илим, 2006. 116 с.
- 9. Нерсесов, И.Л. Кинематика и динамика сейсмических волн на расстояниях до 3500 км от эпицентра / И.Л. Нерсесов, Т.Г. Раутиан // Экспериментальная сейсмика. Труды ИФЗ АН СССР. М.: Наука, 1964. С. 63–87.

АЛМАТЫ ҚАЛАСЫ АУДАНЫНДАҒЫ КАРЬЕРЛІК ЖӘНЕ ҚҰРЫЛЫС ЖАРЫЛЫСТАРЫ СЕЙСМИКАЛЫҚ МОНИТОРИНГ МІНДЕТТЕРІНДЕГІ ЭТАЛОНДЫҚ ОҚИҒАЛАР РЕТІНДЕ

И.Л. Аристова, И.Н. Соколова

Геофизикалық зерттеулер институты, Курчатов, Қазақстан

Алматы қаласы ауданында өндірілген жақсы белгілі параметрлері бар эталондық жарылыстар бойынша деректер негізінде негізгі сейсмикалық аймақтық фазалардың жаңа годографы салынды. Годографты Солтүстік Тянь-Шань аумағында оқиғаларды жергіліктеу үшін пайдаланылатын басқа жылдамдық үлгілерімен салыстыру жүргізілді. Жаңа годографты пайдалану кезінде сейсмикалық оқиғаларды жергіліктеу қателерінің эллипстерінің өлшемдері басқа годографтарды пайдалану кезіндегі мөлшерден төмен екені көрсетілді.

QUARRY AND CONSTRUCTION EXPLISIONS IN THE VICINITY OF ALMATY CITY AS GROUND TRUTH EVENTS IN THE TASKS OF SEISMIC MONITORING

I.L. Aristova, I.N. Sokolova

Institute of Geophysical Research, Kurchatov, Kazakhstan

Based on the data on ground truth explosions with well-known parameters conducted in the vicinity of Almaty city, a new time-travel curve of the main seismic regional phases was built. The time-travel was compared with other velocity models, which are used for localization of events on the territory of Northern Tien Shan. It was shown that when using new time-travel curve, the sizes of error ellipse of seismic events localization are smaller than those of during the use of other time-travel curves.

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФОНОВОЙ ЧАСТОТЫ НЕСТАБИЛЬНЫХ АБЕРРАЦИЙ ДЛЯ НУЛЕВОЙ ТОЧКИ ДОЗЫ В РАЗЛИЧНЫХ РЕГИОНАХ КАЗАХСТАНА

Кенжина Л.Б., Мамырбаева А.Н., Кенесарина А.О.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье приводятся данные исследования региональной фоновой частоты нестабильных аберраций у жителей основных регионов Казахстана (Север, Юг, Запад, Восток). Данный параметр как исходная «нулевая» точка дозы имеет большой процент неопределенности и является переменным. По признаку наибольшей численности и этнического разнообразия населения были выбраны города областного значения. В каждом регионе была сформирована группа коренных жителей – добровольцев в количестве 10 человек, ранжированная по возрастным признакам и по полу в пропорции 1:1 (всего 40 человек). Расчет фоновой частоты для нестабильных хромосомных повреждений производился при помощи оборудования – автоматизированной цитогенетической платформы на базе электронного флуоресцентного микроскопа фирмы *Carl Zeiss AxioImager Z2*, автоматической системой поиска и анализа метафаз *Metafer 4/M Search, ICAROS (MetaSystems, Германия)*. Наблюдаемые результаты исследования демонстрируют межрегиональную вариабельность в пределах от 1,1±0,4 до 3,09±0,6 аберрантных клеток на 1000, что может быть обусловлено целым рядом субъективных и объективных факторов жизнедеятельности. *Ключевые слова:* дицентрики, нестабильные хромосомные аберрации, лимфоциты периферической венозной крови, частота хромосомных аберраций.

Введение

Несмотря на то, что полезное применение радиации в медицине, сельском хозяйстве, энергетике, промышленности и научных исследованиях значительно улучшает качество нашей повседневной жизни, тем не менее, увеличение различных радиологических применений сопряжено с увеличением вероятности случаев, где люди могут быть подвержены переэкспонированию.

Международное агентство по атомной энергии (МАГАТЭ) и Всемирная организация здравоохранения (ВОЗ) в ряде публикаций и руководств [1, 2, 3] приводит перечень видов радиационных аварийных ситуаций, при которых неотъемлемой частью реагирования является цитогенетическая биологическая дозиметрия, обеспечивающая количественную оценку индивидуальной поглощенной дозы человека, необходимую для ранней сортировки, предотвращения и смягчения детерминированных, стохастических эффектов на здоровье персонала и населения.

Цитогенетическая дозиметрия неоднократно демонстрировала свою высокую эффективность в радиационных аварийных ситуациях, приведших к высоким дозам для всего тела или ограниченных участков тела, к внутреннему или внешнему радиоактивному загрязнению человека. Количество гипотетических сценариев, где необходима качественная биодозиметрическая поддержка описаны в «Международной Конвенции о помощи в случае ядерной аварии или радиологической аварийной ситуации» [4].

Растет осознание общественностью риска случайного облучения вследствие старения атомных энергетических установок, незаконного сброса и захоронения ядерных отходов, повышенной угрозы ядерных атак, как вероятного сценария в ходе военных действий, а также связанных с этим рисками для здоровья населения, выходящими за пределы национальных границ. И, несмотря на то, что в сегодняшнем мире царствуют преимущественно дипломатические войны, нельзя исключить возникновение злонамеренных ситуаций террористического характера, таких как случай с Литвиненко и ²¹⁰Ро, при котором большое количество людей было подвергнуто воздействию ионизирующего излучения [5].

Радиационные аварийные ситуации могут затрагивать и многочисленный персонал больниц и Центров ядерной медицины, аварийных работников из служб чрезвычайного реагирования, технический обслуживающий персонал медицинских учреждений. За последние два десятилетия описаны многочисленные случаи облучения в высоких дозах в результате утери или хищения источников, используемых в промышленной радиографии или медицинской терапии [6]. С другой стороны, при лучевой терапии, используемой для лечения раковых опухолей важно знать общую поглощенную дозу, чтобы предотвратить возможные осложнения или побочные эффекты, вызванные значительным переоблучением по различным причинам (например, вследствие ошибки калибровки, неисправности оборудования или неправильного расчета вводимых доз радионуклидов).

Как показывает опыт Чернобыльской катастрофы, урагана Катрин, аварии на Фукусиме, а также многочисленные другие чрезвычайные радиологические события, когда происходят серьезные нарушения инфраструктуры, паника, социальные и экономические беспорядки и т.д., потребность в биологической дозиметрии для быстрой и эффективной первичной и вторичной сортировки остается очень высокой [7]. Цитогенетическая оценка поглощенной дозы позволяет реконструировать индивидуальную дозу в случае неясных или противоречивых ситуаций облучения, особенно когда прямое измерение невозможно, серьезность и степень последствий для здоровья могут быть снижены вследствие своевременного оказания медицинской помощи.

В мире, для готовности и реагирования в области биодозиметрической дозиметрии при крупномасштабных радиационных инцидентах, созданы такие глобальные биодозиметрические сети как:

– Европейская биодозиметрическая сеть (RENEB), куда входят более 27 лабораторий из 19 европейских стран [8];

 Латино-Американская биодозиметрическая сеть (LBDNet), включающая лаборатории из 12 стран [9];

 Северо-Американская биодозиметрическая сеть (NABDNet), состоящая из 18 лабораторий Канады и 2 лабораторий США [10];

– Азиатская биодозиметрическая сеть (ARADOSE), состоящая из 21 страны, включая Казахстан [11];

 Африканская дозиметрическая сеть, включающая 5 стран [12].

Каждая из вышеперечисленных лабораторий, руководствуясь рекомендациями МАГАТЭ, имеет свою собственную калибровочную кривую «доза– эффект», построенную в экспериментальных условиях in vitro, в связи с существенной межлабораторной вариабельностью, особенностями идентификации аберраций хромосом и выбора метафаз для анализа. Для оценки дозы редкоионизирующих и плотноионизирующих излучений используются кривые «доза–эффект» линейно-квадратичного и линейного вида [13].

Поскольку исходная «нулевая» точка дозы имеет большой процент неопределенности и является переменным параметром, необходимым условием является определение стандартной фоновой частоты аберраций. Спорадическая межиндивидуальная изменчивость по умолчанию предполагает межличностные особенности в радиационной восприимчивости и радиорезистентности, поэтому исследование обоснованностей вклада региональных особенностей будет способствовать пониманию закономерностей формирования индивидуальной поглощенной дозы, и как следствие, смягчению последствий для здоровья.

Хотя наблюдается значительная вариабельность данных в различных исследованиях, но в среднем частота дицентриков составляет 1 на 1000 проанализированных клеток. Эта величина принята как норма в рекомендациях МАГАТЭ [1], хотя, по данным многочисленных исследований, она может колебаться в достаточно широких пределах. Так, в статьях [14, 15], посвящённых сравнению фоновых уровней повреждений хромосом, обнаруженных разными цитогенетическими лабораториями, средние частоты дицентриков (на 1000 клеток) в возрастной группе 18 лет и старше варьировали от 0,003 до 0,014.

Учитывая, что Казахстан занимает 9-ое место в мире по занимаемой территории, а также: формиро-

вание в результате хозяйственной деятельности природно-техногенных провинций (таких как нефтегазовая, свинцово-цинковая, мышьяковая, хромовая, железно-рудная, фосфорная и т.д.); значимость разнообразия природно-климатических условий, региональных особенностей питания и микроэлементного статуса; действие естественного радиационного фона, а также эндогенный мутагенез, связанный с ошибками репарации разрывов ДНК в результате жизнедеятельности клеток – целесообразным является определение фоновой спонтанной частоты хромосомных повреждений в Северо-Казахстанской, Южно-Казахстанской, Западно-Казахстанской и Восточно-Казахстанской областях нашей страны.

Впервые, исследование региональных фоновых частот хромосомных аберраций, позволит избежать неопределенностей, отрицательных оценок фоновых значений и отрицательного линейного коэффициента при построении калибровочной кривой «доза-эффект», для которых нет никаких биологических оснований. Групповая изменчивость в ответ на облучение должна оцениваться с использованием регионального коэффициента вариации для каждой группы людей. Индивидуальные особенности функционального состояния или конституции конкретного организма, включая его уровень иммунной защиты и неспецифической резистентности, наличие или отсутствие хронических заболеваний, резервные возможности основных физиологических систем (связанных с возрастом и фенотипическими особенностями организма), могут существенно сказаться на степени тяжести и последствиях поражения вследствие радиационного воздействия, следовательно, определение региональных фоновых частот позволит, учитывая вышеизложенное, обоснованно оценить величину «реальной» индивидуальной поглощенной дозы.

Материалы и методы исследования

Принимая во внимание имеющиеся в литературе сведения о спонтанном мутагенезе, для определения региональной фоновой частоты хромосомных аберраций у населения Казахстана, группы исследования условно были разделены по географическому принципу четырех основных направлений - Север, Юг, Запад, Восток. По признаку наибольшей численности и этнического разнообразия населения были выбраны города областного значения: Северо-Казахстанская область - г. Петропавловск, Южно-Казахстанская область – г. Шымкент, Западно-Казахстанская область – г. Актобе, Восточно-Казахстанская область - г. Усть-Каменогорск. Безусловным критерием отбора добровольцев было рождение и проживание в соответствующем регионе, причем сельский или городской анамнез проживания не учитывался. В результате экспедиционного выезда, в каждом регионе была сформирована группа добровольцев в количестве 10 человек, ранжированная по возрастным признакам и по полу в пропорции 1:1, всего 40 человек (таблица 1). Гетерогенность составов групп в возрастных диапазонах, разнородный этнический состав, наличие у некоторых вредных привычек, хронических заболеваний и т.д. аргументировано созданием многообразной миниатюрной модели региона, отражающей вариативность представителей географической местности. Это условно здоровые люди, не имеющие вредных профессиональных факторов, никогда ранее не подвергавшиеся воздействию ионизирующего излучения, за исключением медицинских рентгенологических процедур.

Таблица 1. Количественная характеристика исследуемых групп в регионах Казахстана

Dervey	Возрастные диапазоны							
гегион	20–29	30–39	40–49	50–59	60–69			
Север, г. Петропавловск	2	2	2	2	2			
Юг, г. Шымкент	2	2	2	2	2			
Запад, г. Актобе	2	2	2	2	2			
Восток, г. Усть-Каменогорск	2	2	2	2	2			
ИТОГО	8	8	8	8	8			

После получения информированного согласия проводилось анкетирование, на основании которого устанавливались: паспортные данные, место рождения и анамнез проживания на территории региона, наличие хронической патологии, повышенного или хронического воздействия факторов, которые могут повлиять на частоту хромосомных аберраций, таких, как табак, алкоголь, химиотерапевтическая и радиотерапия, профессиональные вредности в исследуемых группах.

Материалом исследования послужила периферическая венозная кровь в количестве 6 мл, взятая с соблюдением асептических условий на базе процедурного кабинета в ваккутейнеры с литий-гепарином из расчета 50ME на 1 мл цельной крови.

Цитогенетическое исследование проводилось при помощи дицентрического анализа (DIC), на сегодняшний день рекомендуемым МАГАТЭ как «золотой стандарт» в биологической дозиметрии.

Для блокирования первого митоза на стадии метафазы за 2 часа до окончания культивирования во флаконы с культурой клеток добавляли раствор колхицина в конечной концентрации 0,5 мкг/мл. По окончанию культивирования содержимое флаконов тщательно перемешивали, переливали в 10 мл центрифужные пробирки и центрифугировали при 1200 об/мин в течение 10 мин для осаждения клеток. Далее при помощи насоса отбирали супернатант, клеточный осадок ресуспендировали в 8-10 мл гипотонического раствора (0,075M KCl), предварительно нагретого до 37 °C, и оставляли на 20 мин в термостате при t=37 °C. Затем пробирки с культурой клеток центрифугировали при 1500 об/мин в течение 10 мин и удаляли супернатант. Для фиксации клеток к осадку добавляли холодный свежеприготовленный фиксатор (смесь метилового спирта с ледяной уксусной кислотой в объемном соотношении 3:1), тщательно перемешивали и помещали в морозильную камеру холодильника на 30 минут. Далее клетки осаждали центрифугированием при 1200 об/мин в течение 5–6 мин, отбирали супернатант и добавляли к осадку 5–7 мл свежего фиксатора. Последнюю процедуру повторяли 3 раза, при этом полная продолжительность фиксации клеток составляла не менее 30– 40 мин. Для получения препаратов метафазных хромосом клетки ресуспендировали в фиксаторе с помощью пастеровской пипетки, наносили 3 капли клеточной суспензии на охлажденное влажное предметное стекло и высушивали на термоплате при t=45– 48 °C.

Окраска препаратов проводилась после 24-х часового хранения препаратов в термостате при t=37 °C. Для дицентрического анализа применяли окрашивание 3% раствором Гимза на PBS буфере с pH 6,8 в течение 10–12 минут.

Для анализа метафазных клеток использовали специализированное оборудование на базе электронного автоматизированного микроскопа AxioImager Z2 (Carl Zeiss), программного обеспечения Metafer 4, автоматизированной системы поиска и фоторегистрации метафаз MSearch (MetaSystems), программного обеспечения для анализа хромосомных аберраций ICAROS, ISIS (MetaSystems Software).

Идентификацию хромосомных аберраций проводили при увеличении ок. ×1000, согласно номенклатуре хромосом, при этом подсчет хромосомных аберраций производили только в клетках первого митоза, содержащих 45–46 хромосом. Учитывалась сбалансированность аберраций, ацентрические фрагменты и избыточные ацентрики как сопровождающие фрагменты дицентриков и колец. Аберрации трицентриков считались эквивалентными двум дицентрикам.

Результаты и их обсуждение

Учитывая, что хромосомные нарушения, в первую очередь нестабильные аберрации, являются достаточно редкими событиями в связи с регулярной элиминацией аберрантных лимфоцитов из русла крови в процессе естественной физиологической смены популяции лимфоидных клеток и в процессе митотических делений стволовых клеток, поэтому для получения надежных данных необходимо было проанализировать как можно больше клеточного материала (таблица 2).

Как видно из таблицы, широкие внутрииндивидуальные вариации встречаемости специфических хромосомных повреждений не выходят за пределы типичных для популяции величин и могут быть связаны с циклом жизни лимфоцитов, статусом здоровья, который является объектом медицинских исследований. Полученные в результате исследования хромосомные перестройки в процессе жизнедеятельности организма могут претерпевать значительные колебания, и на данный момент отражают сумму действия множества факторов влияния, как внутреннего, так и внешнего характера (пищевое поведение, вес, вирус-

n/n	Ф.И.О.	Пол	Возраст	Национальность	Курит / не курит	Кол-во клеток проанализ.	ХА	Частота ХА на 1000
			Северо-	Казахстанская облас	сть, г. Петропав	вловск		
1	Донор Г.В.О.	муж.	27	русский	курит	4951	2	0,40
2	Донор К.О.Ю.	муж.	55	русский	курит	5569	2	0,36
3	Донор С.В.А.	жен.	64	русская	не курит	6156	31	5,03
4	Донор С.О.В.	жен.	36	русская	не курит	5369	1	0,18
5	Донор К.А.К.	жен.	55	казашка	не курит	7962	14	1,76
6	Донор В.И.С.	жен.	28	русская	не курит	2130	1	0,47
7	Донор М.Е.В.	жен.	49	русская	не курит	6904	2	0,29
8	Донор К.А.Л.	муж.	61	русский	курит	6800	8	1,17
9	Донор Б.С.Ю.	муж.	33	немец	курит	5155	1	0,19
10	Донор П.А.А.	муж.	44	русский	не курит	6231	1	0,16
	ИТОГО					57227		Cp ± SE 1,10±0.4
			Южн	ю-Казахстанская обл	асть, г. Шымке	нт		
1	Донор Б.Ж.Н.	муж.	27	казах	не курит	4309	4	0,92
2	Донор С.Л.Б.	жен.	31	казашка	не курит	3621	1	0,27
3	Донор М.А.К.	жен.	43	казашка	не курит	2404	1	0,41
4	Донор Ә.Ә.Ә.	муж.	34	казах	не курит	3010	1	0,33
5	Донор С.Ф.О.	жен.	53	казашка	не курит	3376	16	4,74
6	Донор Б.М.С.	муж.	47	казах	не курит	4160	11	2,64
7	Донор Ш.Р.К.	жен.	60	казашка	не курит	4594	4	0,87
8	Донор М.М.Б.	муж.	68	казах	не курит	2369	14	5,90
9	Донор О.Д.К.	жен.	28	казашка	не курит	3197	2	0,62
10	Донор М.А.В.	муж.	58	русский	курит	3168	5	1,57
	ИТОГО					34208	59	Cp ± SE 1,72±0.6
			Запа	адно-Казахстанская с	область, г. Акто	бе		
1	Донор Ж.Б.Е.	муж.	46	казах	не курит	3427	2	0.58
2	Донор Т.А.Т.	муж.	56	казах	курит	4745	2	0.42
3	Донор Т.А.К.	муж.	33	казах	не курит	2939	8	2.72
4	Донор С.Б.К.	муж.	27	казах	не курит	3135	10	3.18
5	Донор Ш.А.О.	муж.	64	казах	курит	3917	19	4,85
6	Донор У.А.Т.	жен.	62	казашка	не курит	3377	10	2,96
7	Донор Е.А.Е.	жен.	35	казашка	не курит	3024	10	3,30
8	Донор А.А.А.	жен.	29	казашка	не курит	3611	19	5,26
9	Донор К.М.Е.	жен.	49	казашка	не курит	3795	25	6,58
10	Донор К.Ж.У.	жен.	52	казашка	не курит	3578	5	1,39
	ИТОГО					35548	110	Cp ± SE 3,09±0.6
			Восточно-	Казахстанская облас	ть, г. Усть-Кам	еногорск		•
1	Донор Т.Е.Н.	муж.	27	казах	не курит	4031	4	0,99
2	Донор А.Ж.	муж.	31	казах	курит	2617	5	1,91
3	Донор Н.А.С.	жен.	38	казашка	не курит	3534	1	0,28
4	Донор Б.Н.Т.	жен.	64	казашка	не курит	4589	16	3.48
5	Донор Б.Ж.М.	жен.	50	казашка	не курит	5767	6	1,04
6	Донор М.М.Б.	муж.	62	казах	не курит	4650	6	1,29
7	Донор К.С.Ш.	муж.	55	казах	не курит	4346	10	2,30
8	Донор А.А.М.	муж.	46	казах	не курит	3000	2	0,66
9	Донор Х.И.О.	жен.	45	русская	не курит	3864	6	1.58
10	Донор Т.А.Б.	жен.	21	казашка	не курит	4981	1	0,20
-	ИТОГО	-		-	71	41144	57	Cp ± SE 1.39±0.3
		1	1	1	l	1		.,

Таблица 2. Результаты распределения межиндивидуальной стандартной фоновой частоты хромосомных аберраций в различных регионах Казахстана

ные заболевания, прием лекарственных препаратов, генетический полиморфизм, антропогенная нагрузка, природные катаклизмы и т.п.). Однако стоит отметить, что наибольшие показатели частоты хромосомных аберраций 3,09±0,6 на 1000 клеток отмечены в Западно-Казахстанском регионе, являющемся наиболее активной промышленной и нефтегазовой провинцией, где интенсивность мутагенного ответа на действие некоторых химических соединений выражена более значимо. Особое внимание стоит уделить тому, что экспедиционные выезды в г. Петропавловск по забору биоматериала проводились в зимневесенний период, когда повышена сезонная заболеваемость вирусными инфекциями.

В целом был проанализирован огромный массив данных – более 168 тысяч клеток, по результатам которого межрегиональный диапазон варьирования составил в среднем от 1,1±0,4 до 3,09±0,6 на 1000 кле-

ток. Данные значения вполне укладываются в общепопуляционные показатели, описанные в международных публикациях. Поскольку метаболизм основных физиологических процессов организма с возрастом снижается, и как следствие приводит к накоплению ошибок репарации ДНК, в возрастном диапазоне 60–69 лет ожидаемо отмечается тенденция к увеличению хромосомных повреждений.

Отдельно стоит отметить присутствие единичных мультиаберрантных клеток, где разрывы и перестройки хромосом, многочисленные полицентрические хромосомы, ацентрические и точечные фрагменты настолько обширны, что их трудно идентифицировать (рисунок 1).

В литературе имеются сообщения о наблюдении таких клеток при обследовании различных популяций людей [16]. Предполагается, что мультиабер-







в)





Рисунок 1. Метафазные клетки в норме (а, б) и мультиаберрантные метафазные клетки (в, г)

рантные клетки могут служить показателем хромосомной нестабильности и указывать на повышенный канцерогенный риск. Однако низкая частота встречаемости и нестабильность мультиаберрантных клеток, непредсказуемость их появления в различных группах пациентов и здоровых лиц существенно затрудняет исследование феномена мультиаберрантности. Предположительно, образование мультиаберрантных клеток является следствием молекулярных событий, отличных от тех, которые приводят к образованию обычных аберрантных клеток, и ведущим механизмом формирования мультиаберрантных клеток является процесс незавершенного апоптоза. Данные клетки в биологической дозиметрии рекомендуется исключать из оценки дозы, кроме случаев воздействия излучения с высокой линейной передачей энергии.

В таблице 3 представлено распределение межрегиональной средней фоновой частоты хромосомных аберраций в возрастных диапазонах, по результатам которой среднегрупповая частота аберраций в целом по Казахстану в возрастном диапазоне 20–29 лет варьирует от 0,43 до 4,3 аберраций на 1000 клеток, в диапазоне 30–39 лет – от 0,19 до 3,02 аберраций на 1000 клеток, в диапазоне 40–49 лет – от 0,23 до 3,74 аберраций на 1000 клеток, в диапазоне 50–59 лет – от 0,84 до 3,21 аберраций на 1000 клеток, в диапазоне 60–69 лет – от 2,38 до 3,98 аберраций на 1000 клеток. В спектре структурных повреждений хромосом преобладали парные и одиночные фрагменты, данный тип аберраций может индуцироваться при действии вирусов и химических факторов.

На рисунке 2 представлены аберрантные метафазы лимфоцитов периферической крови исследуемых: Северо-Казахстанского региона (а, б); Южно-Казахстанского региона (в, г); Западно-Казахстанского региона (д, е) и Восточно-Казахстанского региона (ж, з).

a)

Возрастная	Кол-во	Кол-во проана-	Всего	Средняя частота					
группа	чел.	лизир. клеток	XA R	ХА На 1000 КЛ					
северо-казахстанская область, г. Петропавловск									
20–29	2	7081	3	0,43					
30–39	2	10524	2	0,19					
40–49	2	13135	3	0,23					
50–59	2	13531	16	1,18					
60–69	2	12956	39	3,01					
ИТОГО	10	57227	63	1,10±0,5					
	Южно–Каз	ахстанская область	ь, г. Шы	мкент					
20-29	2	7506	6	0,79					
30–39	2	6631	2	0,30					
40-49	2	6564	12	1,83					
50-59	2	6544	21	3,21					
60–69	2	6963	18	2,58					
ИТОГО	10	34208	59	1,72±0,5					
	Западно–І	(азахстанская обла	сть, г. А	ктобе					
20-29	2	6746	29	4,30					
30–39	2	5963	18	3,02					
40-49	2	7222	27	3,74					
50-59	2	8323	7	0,84					
60–69	2	7294	29	3,98					
ИТОГО	10	35548	110	3,09±0,9					
Восточ	чно–Казах	станская область, г	. Усть-І	(аменогорск					
20-29	2	8851	5	0,57					
30-39	2	6151	6	0,97					
40-49	2	6790	8	1,18					
50-59	2	10113	16	1,58					
60-69	2	9239	22	2,38					
ИТОГО	10	41144	57	1,39±0,3					
		Казахстан в цело	М						
20-29	8	30184	43	1,42					
30-39	8	29269	28	0,96					
40-49	8	33711	50	1,48					
50-59	8	38511	60	1,56					
60-69	8	36452	108	2,96					
ИТОГО	40	168127	289	1,72±0,3					





Рисунок 2. Аберрантные метафазы лимфоцитов периферической крови исследуемых: Северо-Казахстанского (а, б); Южно-Казахстанского (в, г); Западно-Казахстанского (д, е) и Восточно-Казахстанского (ж, з) регионов

ОПРЕДЕЛЕНИЕ ФОНОВОЙ ЧАСТОТЫ НЕСТАБИЛЬНЫХ АБЕРРАЦИЙ ДЛЯ НУЛЕВОЙ ТОЧКИ ДОЗЫ В РАЗЛИЧНЫХ РЕГИОНАХ КАЗАХСТАНА



Рисунок 2 (продолжение). Аберрантные метафазы лимфоцитов периферической крови исследуемых: Северо-Казахстанского (а, б); Южно-Казахстанского (в, г); Западно-Казахстанского (д, е) и Восточно-Казахстанского (ж, з) регионов

Заключение

Таким образом, проведенное цитогенетическое исследование региональной фоновой частоты хромосомных аберраций у жителей различных регионов Казахстана характеризуется достаточно низкими значениями частот, которые сопоставимы с общепопуляционными и литературными данными других исследователей. Наблюдаемые результаты демонстрируют межрегиональную вариабельность в пределах от $1,1\pm0,4$ до $3,09\pm0,6$ аберрантных клеток на 1000, что может быть обусловлено целым рядом субъективных и объективных факторов жизнедеятельности. Полученные данные по средней частоте стандартного фонового уровня хромосомных аберраций в регионах Казахстана необходимо учитывать при построении калибровочной кривой «доза-эффект» как «нулевую» точку дозы, что снизит неопределенность при количественной оценке индивидуальной поглощенной дозы в чрезвычайных и аварийных радиологических ситуациях.

Работа выполнена в рамках темы «Разработка методологии определения дозовых нагрузок на основе цитогенетических и биофизических методов дозиметрии» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Использование цитогенетической дозиметрии для обеспечения готовности и реагирования при радиационных аварийных ситуациях. Международное агентство по атомной энергии Вена 2014. IAEA.
- Blakely W.F., Carr Zh. WHO 1st consultation on the development of a global biodosimetry laboratories network for radiation emergencies (BioDoseNet) / Blakely W.F., Carr Zh., Chu M.C., Dayal-Drager R., Fujimoto K., Hopmeir M., Kulka U., Lillis-Hearne P., Livingston G.K., Lloyd D.C., Maznyk N., Perez Mdel R., Romm H., Takashima Y., Voisin P., Wilkins R.C., Yoshida M.A. // Radiat. Res. – 2009. – № 171(1) – P. 127–139.
- 3. Общие процедуры медицинского реагирования при ядерной или радиологической ситуации. Международное агентство по атомной энергии Вена 2019. IAEA.
- Конвенция об оперативном оповещении о ядерной аварии, и Конвенция о помощи в случае ядерной аварии или радиационной аварийной ситуации. Серия по юридическим вопросам № 14, Международное агентство по атомной энергии – Вена – 1990. – IAEA.
- 5. Harrison J., Fell T. The polonium-210 poisoning of Mr. Alexander Litvinenko / Harrison J., Fell T., Leggett R., Lloyd D., Puncher M., Youngman M. // J. Radiol. Prot. 2017 № 37 (1). P. 266–278.
- Thierens H. Cytogenetic biodosimetry of an accidental exposure of a radiological worker using multiple assays // Thierens H., De Ruyck K., Vral A., de Gelder V., Whitehouse C.A., Tawn E.J., Boesman I. // Rad. Protect. Dosimetry. – 2005. – V. 113(4). – P. 408–414.
- Balajee A.S. Development of electronic training and telescoring tools to increase the surge capacity of dicentric chromosome scorers for radiological/nuclear mass casualty incidents. / Balajee A.S, Escalona M., Iddins C.J, Shuryak I., Livingston G.K., Hanlon D., Dainiak N. // Appl. Radiat. Isot. – 2019. - №144. – P.111-117.
- Kulka U. RENEB Running the European Network of biological dosimetry and physical retrospective dosimetry. / Kulka U., Abend M., Ainsbury E., Badie C., Barquinero J.F., Barrios L., Beinke C., Bortolin E., Cucu A., et all. // Int. J. Radiat. Biol. – 2017 – № 93 (1) – P. 2–14.
- Garcia O. The Latin American Biological Dosimetry Network (LBDNet). / Garcia O., Di Giorgio M., Radl A., Taja M.R., Sapienza C.E., Deminge M.M., Fernandez Rearte J., Stuck Oliveira M., Valdivia P., Lamadrid A.I., Gonzalez J.E., Romero I., Mandina T., Guerrero-Carbajal C., Arceo Maldonado C., Cortina Ramirez G.E., Espinoza M., Martinez-Lopez W., Di Tomasso M.// Radiat. Prot. Dosimetry. – 2016. – № 171. – P. 64–69.
- Ruth C. Wilkins. Evaluation of the annual Canadian biodosimetry network intercomparisons. // Ruth C. Wilkins, Lindsay A. Beaton-Green, Sylvie Lachapelle, Barbara C. Kutzner, Catherine Ferrarotto, Vinita Chauhan, Leonora Marro, Gordon K. Livingston, Hillary Boulay Greene, Farrah N. Flegal. // Int. J. Radiat. Biol. 2015. №91(5). P. 443–451.
- U. Kulka U. Biodosimetry and biodosimetry networks for managing radiation emergency. / Kulka, A. Wojcik, M. Di Giorgio, R. Wilkins, Y. Suto, S. Jang, L. Quing-Jie, L. Jiaxiang, E. Ainsbury, C. Woda, L. Roy, C. Li, D. Lloyd and Z. Carr // Radiation Protection Dosimetry. – 2018 - №137. – P. 1–11
- 12. Soumboundou M. Biological Dosimetry Network in Africa: Establishment of a Dose-response Curve Using Telomere and Centromere Staining. // Soumboundou M., Nkengurutse I., Dossou J., Colicchio B., Djebou C., Gadji M., Houenon G., Dem A., Dedjan A., Diarra M., Adjibade R., Finot F., Hempel W., Dieterlen A., Jeandidier E., Rodriguez-Lafrasse C., M'kacher R. // Health Phys. – 2019.
- Dainiak N. Concepts of operations for a us dosimetry and biodosimetry Network. / Dainiak N., Albanese J., Kaushik M., Balajee A.S., Romanyukha A., Sharp T.J., Blakely W.F. // Radiat. Prot. Dosimetry. 2019.
- Севанькаев А.В. Сравнительный анализ результатов цитогенетических обследований контрольных групп лиц в различных отечественных лабораториях. // Севанькаев А.В., Хвостунов И.К., Снигирёва Г.П. и соавт. // Радиац. биол. Радиоэкология. – 2013. – Т. 53. – № 1. – С. 5–24.
- 15. Wilkins R. C. Interlaboratory Comparison of the Dicentric Chromosome Assay for Radiation Biodosimetry in Mass Casualty Events. // Wilkins R.C., Romm H., Kao T.C., Awa A.A., Yoshida M.A., Livingston G.K., Prasanna P. G. // Radiation Research. – 2008. – № 169 (5). – P. 551–560.
- 16. Aseeva E.A. New type of cells with multiple chromosome rearrangements. / Aseeva E.A., Snigiryova G.P., Neverova A.L., Bogomazova A.N., Novitskaya N.N., Khazins E.D., Domracheva E.V.// Appl. Radiat. Isot. 2010 № 68(4-5). P. 844–847.

ҚАЗАҚСТАННЫҢ ТҮРЛІ АЙМАҚТАРЫНДАҒЫ ДОЗАНЫҢ НӨЛДІК НҮКТЕСІ ҮШІН ТҰРАҚСЫЗ АББЕРАЦИЯЛАРДЫҢ АЯЛЫҚ ЖИІЛІГІН АНЫҚТАУ

Л.Б. Кенжина, А.Н. Мамырбаева, А.О. Кенесарина

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада Қазақстанның негізгі аймақтарының (Солтүстік, Оңтүстік, Батыс, Шығыс) тұрғындарындағы тұрақсыз абберацияларының аймақтық аялық жиілігі туралы зерттеу мәліметтері келтірілген. Бұл параметр бастапқы «нөлдік» доза нүктесі ретінде белгісіздік пайызына ие және ауыспалы болып табылады. Халық санының үлкен және этникалық әртүрлілік нышанына байланысты облыстық маңызы бар қалалар таңдалып алынды. Әр аймақта жас мөлшері мен жынысы бойынша 1:1 қатынасында (барлығы 40 адам) ранжирленіп 10 адамнан тұратын байырғы адамдар тобы – еріктілер тобы құрылды. Тұрақсыз хромосомалық зақымданудың аялық жиілігін есептеу – *Carl Zeiss AxioImager Z2* электронды флуоресцентті микроскоп негізінде автоматтандырылған цитогенетикалық платформада, *Metafer 4/M Search, ICAROS (MetaSystems, Германия)* метафазаны талдамалау және автоматты іздестіру жүйесі бар жабдықтардың көмегімен жүргізілді. Зерттеу барысында байқалған нәтижелерден 1000 адамға абераннты жасушадан 1,1±0,4 бастап 3,09±0,6 дейінгі аралықтағы аймақтық вариабельдікті көрсетеді, бұл өмірлік белсенділіктің бірқатар субъективті және объективті факторларына байланысты шартталуы мүмкін. *Кілт сөздер:* дицентриктер, тұрақсыз хромосомалық аберрациялар, перифериялық венозды қан лимфоциттері, хромосомды аберрациялы аберрациялық вариабельдікті.

DETERMINATION OF THE BACKGROUND FREQUENCY OF UNSTABLE ABERRATIONS FOR THE DOSE ZERO POINT IN DIFFERENT REGIONS OF KAZAKHSTAN

L.B. Kenzhina, A.N. Mamyrbayeva, A.O. Kenesarina

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article gives research into the regional background frequency of unstable aberrations in residents of the main regions of Kazakhstan (North, South, West, East). This parameter as the dose reference "zero" point has a large percentage of uncertainty and is variable. Cities of regional importance were chosen by the biggest population size and its ethnic diversity. In each region a group of indigenous inhabitants was created – 10 volunteers in number. The groups were ranked by age and sex in the ratio of 1:1 (a total of 40 people). The background frequency for unstable chromosome damages was calculated by means of an automated cytogenetic platform on the basis of the *Carl Zeiss AxioImager Z2* electronic fluorescent microscope, the automatic metaphase search and analysis system *Metafer 4/M Search, ICAROS (MetaSystems, Germany)*. Research observations demonstrate an interregional variability of aberrant cells per 1,000 between 1.1 ± 0.4 and 3.09 ± 0.6 , which can be attributable to a variety of human and objective factors of life activity. *Keywords:* dicentrics unstable chromosome aberrations, peripheral black blood lymphocytes, frequency of chromosome aberrations.

ИССЛЕДОВАНИЯ СОДЕРЖАНИЯ ЕСТЕСТВЕННЫХ И ИСКУССТВЕННЫХ РАДИОНУКЛИДОВ В ВОЗДУХЕ СТЕПНОЙ ЗОНЫ РЕСПУБЛИКИ КАЗАХСТАН

¹⁾ Турченко Д.В., ²⁾ Кабдыракова А.М., ¹⁾ Круглыхин А.А.

¹⁾ Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан ²⁾ РГП «Национальный Ядерный Центр Республики Казахстан», Курчатов, Казахстан

В статье представлены обобщенные результаты по оценке уровней и характера радиоактивного загрязнения воздушной среды естественными и искусственными радионуклидами (ЕРН и ИРН) на территории Республики Казахстан для типичной ландшафтной единицы – степной зоны. Применен метод теоретической оценки объемной активности ИРН в воздушной среде. Установлено, что содержание в воздухе ⁴⁰К варьирует от $6,5 \times 10^{-6}$ до $9,5 \times 10^{-5}$ Бк/м³, ²²⁶Ra – от $2,5 \times 10^{-6}$ до $5,0 \times 10^{-5}$ Бк/м³, ⁷Be – от $9,0 \times 10^{-4}$ до $4,5 \times 10^{-3}$ Бк/м³, ²¹⁰Pb – от $1,0 \times 10^{-4}$ до $8,5 \times 10^{-4}$ Бк/м³, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – от $<1,0 \times 10^{-7}$ до $7,3 \times 10^{-7}$ Бк/м³. Результаты теоретической оценки показали, что расчетные значения объемной активности радионуклида ²³²Th достигают $1,8 \times 10^{-6}$ Бк/м³, ²⁴¹Am – $1,1 \times 10^{-8}$ Бк/м³, ¹³⁷Cs – $1,4 \times 10^{-6}$ Бк/м³, ⁹⁰Sr – $2,0 \times 10^{-7}$. Данные, полученные по фоновым концентрациям радионуклидов в воздухе, входят в диапазоны значений международных мониторинговых наблюдений и в дальнейшем могут быть использованы в качестве базовых показателей для оценки изменения качества воздушной среды.

Введение

При оценке влияния на окружающую среду того или иного ядерного события, произошедшего в мире, необходимо иметь представление о текущих уровнях содержания естественных и искусственных радионуклидов (ЕРН и ИРН) в объектах окружающей среды, так называемых фоновых уровнях.

В результате природных климатических процессов глобальные радиоактивные выпадения, находящиеся на поверхности почвенного покрова, непрерывно подвергаются процессам эрозии и равномерно перераспределяются в окружающей среде [1]. ЕРН находятся в любой из природных сред (почва, растения, вода, воздух). Радионуклиды ⁴⁰K, ²³⁴Th, ²²⁶Ra находятся в почве, растениях и воде. Радионуклид ²¹⁰Pb поступает из почвы в результате распада радона, ⁷Ве является космогенным и перераспределяется из верхних слоев атмосферы. ИРН в окружающую среду поступили в результате выпадений глобальных радиоактивных осадков при проведении ядерных испытаний, возникновении радиационных аварий на объектах ЯТЦ, других радиационных событий и инцидентов в мире. Согласно данным, предоставленным научным комитетом Организации Объединенных Наций (ООН) по воздействию атомной радиации, большинство выпадений произошло в северном полушарии (около 77%), оставшаяся часть (23%) – в южном полушарии [2]. Следует отметить, что максимальное количество радиоактивных выпадений в северном полушарии приходится на широту от 40° до 50°. В данном диапазоне широт расположена территория Республики Казахстан.

В данной статье представлены результаты исследования фонового содержания ЕРН и ИРН в воздухе на территории Республики Казахстан для типичной ландшафтной единицы – степной зоны. По результатам исследования распределения ИРН в гранулометрических фракциях почвы проведен теоретический расчет возможного содержания ИРН в воздухе. Проведен сравнительный анализ экспериментальных данных и теоретического расчета.

Полученные данные позволят в дальнейшем оценить возможное влияние деятельности радиационноопасных объектов и инцидентов в мире на территории Республики Казахстан.

1 Материалы и методы исследования

Определение фоновых уровней ЕРН и ИРН в атмосферном воздухе проводилось двумя методами: экспериментальным и расчетным (теоретический). Экспериментальные исследования заключались в проведении отбора проб воздушных аэрозолей и определении объемной активности радионуклидов в отобранных пробах гамма-спектрометрическим и радиохимическим методами.

Для определения фоновых уровней ЕРН и ИРН в атмосферном воздухе были заложены исследовательские профили на 65-м, 70-м и 75-м меридианах восточной долготы (в. д.) в пределах степной зоны на территории Республики Казахстан. Профили, заложенные вдоль 70 и 75 меридианов, проходят преимущественно по территориям Акмолинской, Карагандинской и Павлодарской областей, частично затрагивают территорию Северо-Казахстанской области, профиль на 65 меридиане расположен на территории Костанайской области.

На каждом профиле заложено 5 исследовательских участков, на которых проводился отбор проб воздушных аэрозолей. Всего за период исследований отобрано 15 проб воздушных аэрозолей. Карта расположения исследовательских профилей и участков представлена на рисунке.



Рисунок. Карта расположения исследовательских участков на 65-ом, 70-ом и 75-ом меридианах территории степной зоны Республики Казахстан

Отбор проб воздушных аэрозолей проводился стационарным пробоотборником воздуха *«Бриз»,* производительностью 1500 м³/ч. Для достижения численных значений естественных и техногенных радионуклидов в воздухе отбор проб воздушных аэрозолей проводился непрерывно на протяжении 14–16 часов, объем прокачанного воздуха составлял не менее 25 000 м³.

Каждая отобранная проба воздуха подготавливалась в лабораторных условиях методом озоления и анализировались гамма-спектрометрическим методом на содержание искусственных (241 Am, 137 Cs) и естественных (40 K, 226 Ra, 232 Th, 7 Be, 210 Pb) радионуклидов. После проведения гамма-спектрометрического анализа пробы воздушных аэрозолей анализировались радиохимическим методом на содержание радионуклидов 90 Sr и $^{239+240}$ Pu.

Расчет объемной активности радионуклидов в атмосферном воздухе проводился по следующей формуле:

$$C_{air} = C_{soil} \cdot K_O \cdot \rho_{sus} , \qquad (1)$$

где: C_{air} – объемная активность радионуклидов в воздухе, Бк/м³; C_{soil} – удельная активность радионуклидов в почве, Бк/кг; K_O – коэффициент обогащения для фракции почвы размером <8 мкм; ρ_{sus} – запыленность воздуха, кг/м³.

*К*₀ (коэффициент обогащения) фракции – это безразмерный показатель, определяемый отношением удельной активности радионуклида во фракции к его удельной активности в почве. Для расчетов использованы данные о средней удельной активности радионуклидов в верхнем 5 см слое почвы и максимальное значение K_O для фракции почвы размером <8 мкм, полученные в ходе проведения научно-исследовательской работы «Исследование базовых характеристик радионуклидного загрязнения почвы и воздуха» [3, 4].

Использование в расчете данных для фракции почвы размером <8 мкм обусловлено тем, что она в наибольшей степени может характеризовать ингаляционную фракцию воздушных аэрозолей (<10 мкм) [5, 6].

Для определения запыленности воздуха в местах отбора проб воздуха проводилось измерение концентрации взвешенных аэрозольных частиц по фракциям с размерами <10 мкм (PM10) с помощью анализатора размеров аэрозольных частиц *DustTrack*. Также с периодичностью 5 мин измерялись метеорологические параметры (скорость и направление ветра, относительная влажность и температура) с применением метеорологической станцией *Davis*.

2 Результаты и их обсуждение

2.1 Исследования фоновых уровней естественных и искусственных радионуклидов в воздухе на территории РК

Результаты объемной активности ЕРН и ИРН на территории степной зоны Казахстана представлены в таблицах 1 и 2.

Согласно полученным экспериментальным данным, независимо от области Казахстана объемная активность ЕРН в воздушной среде находится на уровне природного фона.

Tours offens		Объемная активность радионуклидов, Бк/м ³									
точка отоора	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²³² Th	⁷ Be	²¹⁰ Pb						
65-ый меридиан											
2	3,5×10 ⁻⁵ ± 0,4×10 ⁻⁵	3,0×10 ⁻⁵ ± 0,3×10 ⁻⁵	< 5,0×10 ⁻⁶	3,0×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	7,0×10 ⁻⁴ ± 0,7×10 ⁻⁴						
5	< 2,0×10-5	5,0×10 ⁻⁵ ± 0,5×10 ⁻⁵	< 6,0×10 ⁻⁶	4,5×10 ⁻³ ± 0,5×10 ⁻³	8,5×10 ⁻⁴ ± 0,9×10 ⁻⁴						
8	4,0×10 ⁻⁵ ± 0,4×10 ⁻⁵	< 5,0×10 ⁻⁶	< 5,0×10 ⁻⁶	3,5×10 ⁻³ ± 0,4×10 ⁻³	1,0×10 ⁻⁴ ± 0,1×10 ⁻⁴						
11	< 1,0×10-5	< 5,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	1,5×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	$3,0 \times 10^{-4} \pm 0,3 \times 10^{-4}$						
14	< 6,5×10 ⁻⁶	1,5×10 ⁻⁵ ± 0,2×10 ⁻⁵	< 2,0×10 ⁻⁶	1,0×10 ⁻³ ± 0,1×10 ⁻³	$4,0 \times 10^{-4} \pm 0,4 \times 10^{-4}$						
		70-	ый меридиан								
2	1,5×10 ⁻⁵ ± 0,2×10 ⁻⁵	< 5,0×10 ⁻⁶	< 4,0×10 ⁻⁶	1,5×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	1,5×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
6	< 7,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	< 2,0×10 ⁻⁶	1,5×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
10	< 7,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	< 2,0×10 ⁻⁶	9,0×10 ⁻⁴ ± 1,0·10 ⁻⁴	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
12	< 1,0×10⁻⁵	< 5,0×10 ⁻⁶	< 3,5×10-6	3,0×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	4,5×10 ⁻⁴ ± 0,5×10 ⁻⁴						
14	9,5×10⁻⁵ ± 1,0×10⁻⁵	< 4,0×10 ⁻⁶	< 6,5×10 ⁻⁶	2,5×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	4,0×10 ⁻⁴ ± 0,4×10 ⁻⁴						
		75-	ый меридиан								
1	< 9,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	< 2,0×10 ⁻⁶	1,5×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
2	7,5×10 ⁻⁶ ± 1,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	< 2,0×10 ⁻⁶	2,0×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	4,0×10 ⁻⁴ ± 0,4×10 ⁻⁴						
3	< 1,0×10⁻⁵	< 4,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	3,5×10 ⁻³ ± 0,4×10 ⁻³	3,0×10 ⁻⁴ ± 0,3×10 ⁻⁴						
4	< 6,5×10⁻⁵	< 2,5×10 ⁻⁶	< 2,0×10 ⁻⁶	3,0×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
5	< 1,0×10-5	< 5,0×10 ⁻⁶	< 3,0×10 ⁻⁶	2,0×10 ⁻³ ± 0,2×10 ⁻³	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴						
ДОА _{нас}		·	не нормируется								

Таблица І	!. I	Результаты	объемной	активности	ЕРН на	исследуемой	территории
-----------	------	------------	----------	------------	--------	-------------	------------

Таблица 2. Результаты объемной активности ИРН на исследуемой территории

Tours offens		Объемная активность радионуклидов, Бк/м ³									
точка отоора	²⁴¹ Am	¹³⁷ Cs	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	90Sr							
65-ый меридиан											
2	< 7,5×10⁻ ⁷	< 3,5×10 ⁻⁷		*							
5	< 2,5×10 ⁻⁷	< 5,0×10 ⁻⁷	2,1×10 ⁻⁷ ± 1,1×10 ⁻⁷	< 3,7×10 ⁻⁶							
8	< 5,5×10 ⁻⁷	< 3,5×10 ⁻⁷	7,3×10 ⁻⁷ ± 3,2×10 ⁻⁷	< 4,2×10 ⁻⁶							
11	< 3,5×10⁻ ⁷	< 3,5×10 ⁻⁷	6,6×10 ⁻⁷ ± 2,3×10 ⁻⁷	< 2,8×10 ⁻⁶							
14	< 3,0×10⁻ ⁷	< 4,0×10 ⁻⁷	2,9×10 ⁻⁷ ± 1,8×10 ⁻⁷	< 3,2×10 ⁻⁶							
		70-ый мериді	лан								
2	< 4,5×10⁻ ⁷	< 6,5×10 ⁻⁷	4,3×10 ⁻⁷ ± 2,3×10 ⁻⁷	< 0,2×10 ⁻⁵							
6	< 3,0×10⁻ ⁷	< 5,0×10 ⁻⁷	5,1×10 ⁻⁷ ± 2,8×10 ⁻⁷	< 1,5×10⁻⁵							
10	< 2,5×10 ⁻⁷	< 3,5×10 ⁻⁷	< 1,0×10 ⁻⁷	< 0,2×10 ⁻⁵							
12	< 5,0×10 ⁻⁷	< 8,0×10 ⁻⁷	< 5,8×10 ⁻⁷	< 0,4×10 ⁻⁵							
14	< 6,0×10 ⁻⁷	< 9,0×10 ⁻⁷	< 4,3×·10 ⁻⁷	< 0,2×10 ⁻⁵							
		75-ый мериді	лан								
1	< 4,6×10 ⁻⁷	< 5,0×10 ⁻⁷	3,9×10 ⁻⁷ ± 1,2×10 ⁻⁷	< 1,6×10⁻⁵							
2	< 3,0×10 ⁻⁷	< 3,5×10 ⁻⁷	6,3×10 ⁻⁷ ± 3,3×10 ⁻⁷	< 0,2×10 ⁻⁵							
3	< 5,0×10⁻ ⁷	< 5,5×10 ⁻⁷	6,1×10 ⁻⁷ ± 3,3×10 ⁻⁷	< 1,0×10⁻⁵							
4	< 3,0×10 ⁻⁷	< 3,5×10 ⁻⁷	< 8,7×10 ⁻⁷	< 0,2×10 ⁻⁵							
5	< 4,5×10 ⁻⁷	< 5,0×10 ⁻⁷	< 7,0×10 ⁻⁷	< 0,4×10 ⁻⁵							
ДОАнас	2,9·10⁻³	27	2,5·10 ⁻³	2,7							

Примечание: * — в работе

Диапазон объемной активности естественных радионуклидов на территории Казахстана составил: для 40 К – от 6,5×10⁻⁶ до 9,5×10⁻⁵ Бк/м³, для 226 Ra – от 2,5×10⁻⁶ до 5,0×10⁻⁵ Бк/м³, для 232 Th – <6,5×10⁻⁶ Бк/м³, для 7 Be – от 9,0×10⁻⁴ до 4,5×10⁻³ Бк/м³, для 210 Pb – от 1,0×10⁻⁴ до 8,5×10⁻⁴ Бк/м³.

Содержание искусственных радионуклидов ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs и ⁹⁰Sr в воздухе территории Казахстана

находится на уровне предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Содержание радионуклида $^{239+240}$ Ри в воздухе варьирует от <1,0×10⁻⁷ до 7,3×10⁻⁷ Бк/м³, что 3 порядка ниже допустимой объемной активности для категории население (ДОА_{НАС}), установленной гигиеническими нормативами [7].

Место отбора		Удельная активность, Бк/кг (M±SEM)*										
	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	⁹⁰ Sr	40 K	²³² Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb				
65 меридиан	12±2	0,2±0,04	0,8±0,2	2,6±0,4	497±27	34±2	35±2	65±4				
70 меридиан	18±4	0,3±0,1	0,7±0,1	3,3±1,3	577±28	36±2	33±1	85±7				
75 меридиан	16±3	0,3±0,04	0,6±0,1	4,7±0,7	663±61	34±2	31±3	71±5				

Таблица 3. Средние значения (арифметическое) удельной активности некоторых ЕРН и ИРН в почве

Примечание: * — М – арифметическое среднее, SEM – стандартная ошибка среднего

2.2 Теоретическая оценка содержания ЕРН и ИРН в воздухе

Теоретическая оценка проводилась с целью получения количественных данных об ожидаемой объемной активности ЕРН и ИРН в воздушной среде, так как в результате экспериментальных исследований для большинства исследуемых радионуклидов не удалось получить численные значения их концентрации в воздухе.

Данные о средней удельной активности исследуемых ЕРН и ИРН в поверхностном слое почвы (5 см), значения K_0 фракций размером <8 мкм, а также результаты измерения запыленности атмосферного воздуха, использованные для расчета, представлены в таблице 3.

Из данных таблицы видно, что средние значения удельной активности некоторых радионуклидов в почвах, отобранных по профилю вдоль 65 меридиана, несколько ниже, нежели в остальных профилях. Тем не менее, данные значения довольно близки, что может свидетельствовать об относительной равномерности характера пространственного распределения ЕРН и ИРН в исследуемых почвах. Среднее содержание радионуклидов ⁴⁰K, ²³²Th и ²²⁶Ra в исследуемых почвах, согласуется с данными, установленными ранее для почв Казахстана (⁴⁰K – 100–1200 Бк/кг, ²³²Th – 4–88 Бк/кг и ²²⁶Ra – 12–120 Бк/кг [8]), а ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – с данными, полученными для глобальных выпадений на северном полушарии (4–29 Бк/кг, 1–19 Бк/кг и 0,02–5,0 Бк/кг соответственно [9]).

Таблица 4. Максимальные значения K₀ во фракциях почвы размером <8 мкм, установленные в степной зоне (по 70 и 75 меридианам в. д.)

Ko							
¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	90Sr	40 K	²³² Th	²²⁶ Ra	²¹⁰ Pb
5,0	2,4	4,2	2,7	2,4	3,1	5,3	3,2

Представленные в таблице 4 данные указывают на то, что в тонкодисперсных фракциях почв происходит значительная аккумуляция исследуемых ЕРН и ИРН. Преимущественная аккумуляция ИРН в тонкодисперсных фракциях почвы может свидетельствовать о том, что основным источником их поступления являются глобальные выпадения. Анализ литературных данных показал, что такое распределение ИРН по гранулометрическим фракциям почвы характерно для почв с «фоновым» содержанием радионуклидов, т.е. для глобальных выпадений [10–14].

Результаты проведенных измерений (таблица 5) показали, что на исследуемой территории, в условиях степной местности, концентрация взвешенных частиц РМ10 в воздухе зависит от значения скорости ветра. При средней скорости ветра от 0,1 до 0,5 м/с наблюдается минимальная концентрация взвешенных частиц в воздухе от 7,6 до 9,7 мкг/м³. С увеличением скорости ветра концентрация взвешенных частиц в воздухе возрастает.

Таблица 5. Концентрация взвешенных частиц РМ10 в	3
атмосферном воздухе и метеорологические параметр	ь
на исследуемой территории	

Точка отбора	Взвешенные частицы РМ10, мкг/м ³	Скорость ветра, м/с	Влажность, %	Температура, °C			
		70-ый мерид	циан				
2	9,7	0,49	85,8	16,0			
6	8,4	0,09	83,4	12,8			
10	20,1	2,76	50,8	25,0			
12	19,3	1,1	84	15,9			
14	30,8	2,6	47	24,3			
	75-ый меридиан						
3	16,7	0,6	53	21,3			
5	7,6	0,2	52	9,9			
8	12,7	1,1	65	21,7			
10	12,9	1,2	38	26,3			
14	18,0	0,7	37	25,5			

Какой-либо корреляционной зависимости между концентрацией взвешенных частиц и другими метеорологическими данными (влажность, температура и давление) не обнаружено. Средняя концентрация взвешенных частиц РМ10 в воздухе составила 15,7 мкг/м³ и была использована в расчете объемной активности ЕРН и ИРН в воздухе.

В таблице 6 представлены теоретически рассчитанные значения объемной активности ЕРН и ИРН в атмосферном воздухе на исследуемой территории (степной зоны).

Результаты показали, что расчетные и экспериментальные данные объемной активности радионуклидов в атмосферном воздухе на исследуемой территории, в целом, хорошо согласуются. Лишь для ²¹⁰Pb

Demonstra					
Радионуклид	65-ый меридиан в. д.	70-ый меридиан в. д.	75-ый меридиан в. д.	ДОА _{нас} , DK/M ^o	
¹³⁷ Cs	(9,4±1,6)×10 ⁻⁷	(1,4±0,3)×10⁻ ⁶	(1,3±0,2)×10⁻ ⁶	27	
²⁴¹ Am	(7,5±1,5)×10 ⁻⁹	(1,1±0,4)×10⁻ ⁸	(1,1±0,2)×10⁻ ⁸	2,9·10⁻³	
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	(5,3±1,3)×10⁻ ⁸	(4,6±0,7)×10⁻ ⁸	(4,0±0,7)×10 ⁻⁸	2,5·10 ⁻³	
⁹⁰ Sr	(1,1±0,2)×10⁻ ⁷	(1,4±0,6)×10⁻ ⁷	(2,0±0,3)×10 ⁻⁷	2,7	
⁴⁰ K	(1,9±0,1)×10⁻⁵	(2,2±0,1)×10⁻⁵	(2,5±0,2)×10⁻⁵		
²³² Th	(1,7±0,1)×10 ⁻⁶	(1,8±0,1)×10 ⁻⁶	(1,7±0,1)×10 ⁻⁶		
²²⁶ Ra	(2,9±0,2)×10 ⁻⁶	(2,7±0,1)×10⁻ ⁶	(2,6±0,2)×10 ⁻⁶	не нормируются	
²¹⁰ Pb	(3,3±0,2)×10 ⁻⁶	(4,3±0,4)×10 ⁻⁶	(3,6±0,3)×10 ⁻⁶		

Таблица 6. Расчетная объемная активность радионуклидов в воздушной среде исследуемой территории

объемная активность радионуклида, полученная расчетным методом, оказалась значительно ниже, чем при экспериментальном исследовании. Полученные значения объемной активности ИРН в воздухе на исследуемой территории на 5–8 порядков ниже ДОА_{НАС}, установленной гигиеническими нормативами [7].

Заключение

В результате проведенных исследований установлен диапазон фоновых уровней ЕРН и ИРН в воздушной среде степной зоны Павлодарской, Акмолинской и Костанайской области Республики Казахстан. Определено, что данные, полученные в ходе экспериментальных работ и теоретических расчетов, хорошо согласуются между собой. На основании проведенного лабораторного анализа установлено, что содержание в воздухе ⁴⁰К варьирует от 6,5×10⁻⁶ до 9,5×10⁻⁵ Бк/м³, ²²⁶Ra – от 2,5×10⁻⁶ до 5,0×10⁻⁵ Бк/м³, ⁷Be – от 9,0×10⁻⁴ до 4,5×10⁻³ Бк/м³, ²¹⁰Pb – от 1,0×10⁻⁴ до

8,5×10⁻⁴ Бк/м³, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – от <1,0×10⁻⁷ до 7,3×10⁻⁷ Бк/м³. Результаты теоретической оценки показали, что расчетные значения объемной активности радионуклида ²³²Th достигают 1,8×10⁻⁶ Бк/м³, ²⁴¹Am – 1,1×10⁻⁸ Бкм³, ¹³⁷Cs – 1,4×10⁻⁶ Бк/м³, ⁹⁰Sr – 2,0×10⁻⁷. Данные, полученные по фоновым концентрациям радионуклидов в воздухе, входят в диапазоны международных мониторинговых наблюдений [15–19] и в дальнейшем могут быть использованы в качестве базовых показателей для оценки изменения качества воздушной среды.

Работа выполнена в рамках темы «Разработка системы радионуклидного мониторинга ядерных событий и радиационных аварий» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- Alewell, C. ²³⁹⁺²⁴⁰Pu from contaminant to soil erosion tracer: Where do we stand? / C. Alewella, A. Pitois, K. Meusburger, M. Ketterer, L. Mabit // Earth-Science Reviews. 2017. Vol. 172 P. 107–123.
- Evrard, O. A global review of sediment source fingerprinting research incorporating fallout radiocesium (¹³⁷Cs) / O. Evrard, P. Chaboche, R. Ramona, A. Foucher, P. Laceby // Geomorphology. 2020. Vol. 362. pp.107103.
- Исследование базовых характеристик радионуклидного загрязнения почвы и воздуха: отчет и НИР (промежуточ.) / филиал ИРБЭ РГП НЯЦ РК; зам. дир. Айдарханов А.О. – Курчатов, 2018. – 45 с.
- 4. Исследование базовых характеристик радионуклидного загрязнения почвы и воздуха: отчет и НИР (промежуточ.) / филиал ИРБЭ РГП НЯЦ РК; рук. Айдарханов А.О. Курчатов, 2019. 71 с.
- СТ РК 7708-2010. Качество воздуха. Определение фракций по крупности частиц для отбора проб в целях охраны здоровья. – Введ. 2011-07-01. – Астана. : Госстандарт РК : Комитет технического регулирования и метрологии, 2010. – IV, 11 с.
- Volken J.C. Workplace aerosol measurement / J.C. Volken, A.D. Maynard, M. Harper // Aerosol Measurement: Principles, Techniques and Applications / edited by K. Willeke and P.A. Baron – New York: Van Nostrand Reinhold, 1993 – p. 571-590 – ISBN 0-442-00486-9.
- 7. Гигиенические нормативы «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности», № 155 от 27.02.2015 года.
- Учебно-методическое руководство по радиоэкологии и обращению с радиоактивными отходами для условий Казахстана: ОАО «Волковгеология». – Алматы, 2002. – 304 с.
- Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана. Выпуск 5. Оптимизация исследований территорий Семипалатинского испытательного полигона с целью их передачи в хозяйственный оборот / под рук. Лукашенко С.Н. – Павлодар: Дом печати, 2015. – 356 с.: ил. – Библиогр.: с 332–349.
- 10. Павлоцкая Ф. И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974. 215 с.
- Kelley J.M., Bond L.A., Beasley T.M. Global distribution of Pu isotopes and ²³⁷Np // Science of The Total Environment. 1999. – Vol. 237–238. – P. 483–500.
- Xu Y., Pan S., Wu M., Zhang K., Hao Y., Association of Plutonium isotopes with natural soil particles of different size and comparison with ¹³⁷Cs // Science of The Total Environment. – 2017. – Vol. 581–582. – P. 541–549.

- 13. Bihary A., Dezso Z., Examination of the effect of particle size on the radionuclide content of soils // Journal of environmental radioactivity. 2008. Vol. 99. P. 1083-1089.
- 14. Tsukada H, Takeda A., Hisamatsu S., Inaba J., Concentration and specific activity of fallout ¹³⁷Cs in extracted and particle-size fractions of cultivated soils // Journal of Environmental Radioactivity. 2008. N 99. P. 875–881.
- Hötzl H., Winkler R., Activity concentrations of ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²¹⁰Pb, ⁴⁰K and ⁷Be and their temporal variations in surface air // Journal of Environmental Radioactivity. – 1987. – Vol. 5. – P. 445–458.
- Corcho Alvarado J.A., Steinmann P., Estier S., Bochud F., Haldimann M., Froidevaux P., Anthropogenic radionuclides in atmospheric air over Switzerland during the last few decades // Nature Communications. – 2014. – 5.3030. https://doi.org/10.1038/ncomms4030.
- 17. http://www.chelpogoda.ru/pages/310.php
- Todorovic D., Popovic D., Djuric G., Concentration measurements of ⁷Be and ¹³⁷Cs in ground level air in the Belgrade City area // Environment International. – 1999. – Vol. 25. – P. 59–66.
- Sik Choia M., Lee D., Choi J., Cha H., Yi H., ²³⁹⁺²⁴⁰Pu concentration and isotope ratio (²⁴⁰Pu/²³⁹Pu) in aerosols during high dust (Yellow Sand) period, Korea // Science of The Total Environment. – 2006. – Vol. 370. – P. 262–270.

ҚАЗАҚСТАН РЕСПУБЛИКАСЫНЫҢ ДАЛАЛЫҚ АЙМАҒЫНЫҢ АУАСЫНДАҒЫ ТАБИҒИ ЖӘНЕ ЖАСАНДЫ РАДИОНУКЛИДТЕРДІҢ ҚҰРАМЫН ЗЕРТТЕУ

¹⁾ Д.В. Турченко, ²⁾ А.М. Кабдыракова, ¹⁾ А.А. Круглыхин

¹⁾ ҚР ҰЯО «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан ²⁾ «Қазақстан Республикасы Ұлттық ядролық орталығы» РМК, Курчатов, Қазақстан

Мақалада Қазақстан Республикасының аумағына тән ландшафтық бірлігі - далалық аймақтың ауа ортасының табиғи және жасанды радионуклидтермен (ТРН және ЖРН) радиоактивті ластану деңгейі мен сипатын бағалау бойынша жинақталған нәтижелер келтірілген. Ауа ортасындағы ЖРН көлемдік белсенділігін теориялық бағалау әдісі қолданылды. Ауадағы ⁴⁰К құрамы 6,5×10⁻⁶ бастап 9,5×10⁻⁵ Бк/м³ дейін, ²²⁶Ra – 2,5×10⁻⁶ бастап 5,0×10⁻⁵ Бк/м³ дейін, ⁷Be – 9,0×10⁻⁴ бастап 4,5×10⁻³ Бк/м³ дейін, ²¹⁰Pb – 1,0×10⁻⁵ Бк/м³ дейін, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu – <1,0×10⁻⁷ бастап 7,3×10⁻⁷ Бк/м³дейінгі мәнде құбылатыны анықталды. Теориялық бағалау нәтижелерінен, ²³²Th радионуклидінің көлемдік белсенділігінің есептеу мәні ²³²Th – 1,8×10⁻⁶ Бк/м³, ²⁴¹Am – 1,1×10⁻⁸ Бкм³, ¹³⁷Cs – 1,4×10⁻⁶ Бк/м³, ⁹⁰Sr – 2,0×10⁻⁷ дейін жеткенін көрсетті. Ауадағы радионуклидтердің аялық шоғырлануы бойынша алынған деректер, халықаралық мониторингілік бақылау мәнінің диапазоны енеді және одан ары қарай ауа ортасының сапасының өзгерісін бағалауға арналған базалық көрсеткіштер ретінде пайдаланылуы мүмкін.

RESEARCH INTO THE CONTENT OF NATURALLY OCCURRING AND ARTIFICIAL RADIONUCLIDES IN THE AIR OF THE STEPPE ZONE OF THE REPUBLIC OF KAZAKHSTAN

¹⁾ D.V. Turchenko, ²⁾ A.M. Kabdyrakova, ¹⁾ A.A. Kruglykhin

^{1).} Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan ^{2).} RSE "National Nuclear Center of the Republic of Kazakhstan", Kurchatov, Kazakhstan

The article provides summarized results on the assessment of levels and nature of radioactive contamination of the air environment with naturally occurring and artificial radionuclides (NRN and ARR) in the territory of the Republic of Kazakhstan for the typical landscape unit – a steppe zone. A technique of the theoretical assessment of ARN activity concentrations in the air is applied. It was found that the content of ⁴⁰K in the air varies from 6.5×10^{-6} to 9.5×10^{-5} Bq/m³, ²²⁶Ra -2.5×10^{-6} to 5.0×10^{-5} Bq/m³, ⁷Be -9.0×10^{-4} to 4.5×10^{-3} Bq/m³, ²¹⁰Pb -1.0×10^{-4} to 8.5×10^{-4} Bq/m³, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu - $<1.0 \times 10^{-7}$ to 7.3×10^{-7} Bq/m³, ²⁴¹Am -1.1×10^{-8} Bq/m³, ¹³⁷Cs -1.4×10^{-6} Bq/m³, ⁹⁰Sr -2.0×10^{-7} . Data obtained for radionuclides background concentrations in the air is within ranges of values of international monitoring observations and can subsequently be used as basic indices for assessing variation in the quality of the air environment.

РАЗРАБОТКА СИСТЕМЫ РАДИОНУКЛИДНОГО МОНИТОРИНГА ЯДЕРНЫХ СОБЫТИЙ И РАДИАЦИОННЫХ АВАРИЙ В НЯЦ РК

Турченко Д.В., Ляхова О.Н., Круглыхин А.А.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье рассмотрен вопрос создания радионуклидной станции мониторинга в Республике Казахстан с целью регистрации ядерных событий и радиационных аварий. Представлены методы определения радионуклидов в воздушной среде и рекомендации к выбору основного и вспомогательного оборудования для проведения отбора и анализа проб воздуха. Рассмотрен выбор участка для размещения станции радионуклидного мониторинга в г. Курчатов, на базе НЯЦ РК, в соответствии с требованиями Организации Договора о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний (ОДВЗЯИ). Приведены данные о содержании естественных и техногенных радионуклидов в воздушной среде в месте планируемого размещения станции.

Введение

С начала развития атомной энергии в военных и мирных целях, которое началось еще в первой половине XX века, с каждым годом возрастает проблема загрязнения окружающей среды техногенными радионуклидами. Источниками поступления таких радионуклидов в окружающую нас среду являются: атмосферные, наземные и подземные ядерные взрывы; выбросы радиоактивных веществ как при штатной работе атомных предприятий и электростанций, так и в случае аварийных ситуаций; использование ядерных технологий и источников радиоактивности в различных отраслях народного хозяйства и т. д.

Продолжающееся с годами развитие этой проблемы, в свою очередь, вызвало интенсивный рост систем радиоактивного мониторинга воздушной среды с целью проведения многолетних наблюдений за развитием радиационной обстановки. Анализ таких данных позволяет оценивать экологическую безопасность отдельных предприятий ядерного топливного цикла (ЯТЦ), выявлять нарушения в обращении с радиационно-опасными материалами, прогнозировать возможность возникновения аварийных ситуаций, и что не менее важно – осуществлять наблюдения за изменением радиационной ситуацией в мире.

В мировой практике контроль радионуклидного загрязнения воздуха принято осуществлять при помощи станций радионуклидного мониторинга, которые расположены по всему миру и входят в международную сеть мониторинга (МСМ). Такие станции используются для качественной идентификации того или иного ядерного события или инцидента, когда необходимо иметь представление о содержании определенных радионуклидов в воздушной среде. В случае резких повышений их концентрации в атмосферном воздухе, опираясь на полученные со станций данные, можно не только установить природу произошедшего события, но и провести оценку влияния на окружающую среду. В мире существуют станции радионуклидного мониторинга 2-х типов: для контроля твердых аэрозольных частиц и контроля благородных газов в воздухе [1].

На территории Республики Казахстан эксплуатируется Банк низкообогащенного топлива при участии МАГАТЭ, рассматривается вопрос строительства атомной электростанции, действуют производства по добыче природного урана и предприятия ядерного топливного цикла (ЯТЦ), в связи, с чем возникает необходимость в обеспечении контроля за радиоактивным загрязнением воздушной среды. Однако, на сегодняшний день, на территории Казахстана станции подобного типа отсутствуют.

Создание станции радионуклидного мониторинга в Казахстане позволило бы более достоверно определять «природу» происхождения различных антропогенных событий, и внести существенный вклад в развитие системы мониторинга как в Казахстане, так и в мировом сообществе.

С целью создания такой станции, в ноябре 2017 года между Министерством энергетики РК и Министерством иностранных дел, торговли и развития Канады заключен Меморандум о взаимопонимании по имущественному вкладу в Радионуклидную станцию мониторинга благородных газов (далее – Меморандум) для укрепления контроля за выполнением Договора о всеобъемлющем запрещении ядерных испытаний (далее – ДВЗЯИ).

Согласно Меморандуму, ответственным за эксплуатацию оборудования радионуклидной станции назначено подведомственное предприятие Министерства – Республиканское государственное предприятие на праве хозяйственного ведения «Национальный ядерный центр Республики Казахстан» Министерства энергетики РК (далее – РГП НЯЦ РК). В этой связи, после подписания меморандума, РГП НЯЦ РК начал работу по подготовке площадки для размещения станции радионуклидного мониторинга, соответствующей инфраструктуры и инженерных коммуникаций. Все работы проводились в строгом соответствии требованиям ОДВЗЯИ.

В связи с этим, целью данной работы являлось проведение исследований, направленных на обоснованный выбор основных критериев для создания системы радионуклидного мониторинга ядерных событий и радиационных аварий на основе станции радионуклидного мониторинга и выбора участка для ее расположения.

Исследования проводились на базе РГП НЯЦ РК, в г. Курчатов, в рамках мероприятия «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» республиканской бюджетной программы 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики» на 2018–2020 гг.

1 Краткая характеристика источников поступления радионуклидов в атмосферный воздух

При разработке системы радионуклидного мониторинга воздушной среды, необходимо иметь ввиду, что в окружающей среде изначально имеются естественные и искусственные радионуклиды, которые создают радиационный «фон». Он складывается из космического излучения, излучения от радионуклидов, находящихся в земной коре, воздухе и других объектах внешней среды природных радионуклидов, и излучения от искусственных (техногенных) радионуклидов, образовавшихся в результате деятельности предприятий атомной промышленности, ядерного топливного цикла, учреждениями, использующими радиоактивные вещества.

Как правило, основной вклад в естественную радиацию вносят радионуклиды ⁴⁰K, ²³⁸U и ²³²Th, вместе с продуктами распада урана и тория, такими как ²²⁶Ra, ²²²Rn, изотопы свинца и висмута (²¹²Pb, ²¹²Bi), также могут присутствовать ²¹⁰Rb и ²¹⁰Po. Свой вклад в естественную радиацию вносят и радионуклиды космического излучения – это ³H, ⁷Be, ¹⁴C и ²²Na. При проведении исследований радиоактивного загрязнения воздушной среды естественные радионуклиды зачастую используются для изучения движения воздушных масс. Например, ⁷Be и ²¹⁰Pb, используются для оценки изменения климатических условий местности, что в свою очередь, может оказать существенную пользу при определении места происхождения инцидента или аварии.

Существенный вклад в загрязнение атмосферы естественными и техногенными радионуклидами могут вносить месторождения радиоактивных и некоторых других полезных ископаемых, предприятия по добыче и переработки радиоактивного минерального сырья, естественные горные породы с повышенным содержанием радиоактивных элементов, природные воды с высоким содержанием радона, промышленные предприятия по добыче и переработке некоторых типов полезных ископаемых, в том числе угля, нефти и газа, ГРЭС и ТЭЦ, работающие на углях или горючих сланцах. Продукты распада радона поступают в атмосферу с золой при сжигании угля в ТЭЦ, в результате чего происходит выброс в атмосферу ряда радиоактивных элементов.

Одним из значимых источников загрязнения воздушной среды является ядерная энергетика. По состоянию на сегодняшний день в мире эксплуатируется 192 атомных электростанции, где используется 438 энергоблоков. Для обеспечения этих АЭС ядерным топливом необходимо ежегодно почти 4000 т природного урана. При ядерных реакциях, происходящих в активной зоне реактора, выделяются радиоактивные газы. Однако, расчеты показали, что радиоактивное воздействие на биосферу этих предприятий, при нормальной эксплуатации, не превышает 2% от местного радиационного фона. В основном, выбросы АЭС на 99,9% состоят из инертных радиоактивных газов (ИРГ). В процессе деления образуется около 20 радиоизотопов криптона (Kr) и ксенона (Xe), из которых основной вклад в ИРГ вносят ⁸⁸Кr (период полураспада (T_{1/2}) = 2,8 ч), 133 Xe (T_{1/2}=5,3 сут.) и ¹³⁵Хе (Т_{1/2}=9,2 ч), дающие различный вклад, в зависимости от типа реактора. Наиболее часто встречающимся из этого семейства является ¹³³Хе, так как он имеет наиболее высокий выход при делении и сравнительно большой период полураспада, и вследствие высокой летучести его можно фиксировать на значительных расстояниях от места образования. Также, при делении ядер U или Pu образуются короткоживущие техногенные радионуклиды ¹³⁴Cs (2 года), ¹³¹I (8 суток), ¹⁴⁰Ва (12,8 суток). На их долю и долю других оставшихся радионуклидов приходится менее 1%. Характер и количество газообразных радиоактивных выбросов зависит от типа реактора и системы обращения с этими отходами [2], однако при возникновении аварии, всегда существуют риск существенного увеличения концентрации перечисленных радионуклидов в атмосферном воздухе.

Испытания ядерного оружия в атмосфере послужили существенному увеличению концентрации радиоактивных продуктов в воздушной среде во время их проведения. По данным ООН с 1945 до 1980 гг. произведено 423 атмосферных взрыва суммарной мощностью 545,4 Мт. В 1963 г. США, СССР и Великобритания подписали договор о прекращении экспериментальных ядерных взрывов в атмосфере, космическом пространстве и под водой. Франция отказалась присоединиться к этому договору и продолжала испытания ядерного оружия в атмосфере до 1974 г., а КНР – вплоть до 1980 г. Ядерное оружие испытывали на полигонах в Маралинге (Австралия), Семипалатинске (СССР), штате Невада близ Лас-Вегаса (США), на атолле Муруроа во французской Полинезии и в китайской провинции Синцзянь. При этих взрывах образовалось большое количество радионуклидов как в результате процессов деления ядра, так и при реакциях синтеза легких ядер. Принято считать, что выход продуктов деления пропорционален мощности взрыва за счет реакции деления, а выход нуклидов – за счет продуктов активации таких ядер, как например ³H и 14 C – пропорционален мощности взрыва за счет реакции синтеза.

2 «Реперные» радионуклиды и методы их определения

2.1 Виды «реперных» радионуклидов

В случае появления избыточной радиации в атмосферном воздухе, необходимо не только определить концентрацию радионуклидов в нем, но и точно определить источник их образования, поскольку активность радионуклида не всегда характеризует его биологическую опасность. Так, например, 1 Бк ²¹⁰Ро отличается по своему биологическому действию на живой организм от 1 Бк ³Н при поступлении внутрь организма, примерно, в 200 тысяч раз. В первом случае, практически в 100% случае наступит летальный исход, во втором случае, такая концентрация ³Н вполне допустима [3]. В связи с этим, при поступлении какого-либо радионуклида в воздух, для оценки источника излучения, необходимо рассматривать каждый радионуклид отдельно. Это наиболее правильный подход, но не всегда удобный по временным затратам. Поэтому, при рассмотрении опасного радиационного инцидента, общепринятым считается метод использования реперных (наиболее показательных) радионуклидов, изучение которых позволит в краткие сроки сделать оценочные, а затем и более достоверные выводы [4-7].

Например, при подземных ядерных взрывах, изотопы Хе не образуют соединений ни с одним из химических элементов и, благодаря этому, беспрепятственно попадают в атмосферу, затем медленно вымываются осадками. Так, после аварии на Фукусиме, повышенные концентрации Хе в северном полушарии Земли через несколько недель регистрировались повсеместно, а их значения были в разных местах северного полушария практически одинаковы [8]. В зависимости от характера ядерного испытания или взрыва, после его возникновения также можно ожидать появление в воздухе повышенных концентраций ¹³⁷Сs, ¹³⁴Сs ¹³¹I, ¹⁴⁰Ва, которые вследствие своих физико-химических свойств могут легко перемещаться на большие расстояния относительно места их образования. Наличие повышенных концентраций данных радионуклидов по сравнению с фоновыми значениями, будут свидетельствовать о возникновении техногенного источника радиации. Это может быть не только ядерных взрыв, но и радиационной аварии либо незапланированные сверхнормативные выбросы на АЭС и других предприятиях ЯТЦ.

При этом, по соотношению концентраций ¹³³Xe/¹³⁵Xe аварийные выбросы отличаются от выбросов при ядерных инцидентах (взрывах), следовательно, изучение их соотношений позволит определить природу радиационного инцидента. Сравнение полученных экспериментальных отношений с равновесными позволит рассчитать время, прошедшее между выходом изотопов ксенона из реактора и моментом его измерения в отобранной пробе воздуха.

В выбросах АЭС и после проведении ядерных испытаний, наряду с инертными радиоактивными газа-

ми, часто присутствуют радиоактивные аэрозоли, таких как ⁹⁰Sr, ¹⁰⁶Ru, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am и ⁹⁹Tc, увеличение концентрации которых в воздухе может свидетельствовать о возникновении чрезвычайной радиационной ситуации.

Значительное место среди короткоживущих радионуклидов в атмосфере занимают продукты распада радона и торона. Даже через сутки после отбора пробы, ее радиоактивность может быть обусловлена естественным ²¹²Pb, период полураспада которого 10,6 ч. Кроме того, в пробах аэрозолей практически всегда присутствует космогенный радионуклид ⁷Be (53 суток) и ²¹⁰Pb (22,3 г.).

Последние два радионуклида, ⁷Ве и ²¹⁰Pb, являются дочерними продуктами радона, и содержатся в приземном слое воздуха. Данные радионуклиды часто используются как маркерные при изучении распределения аэрозолей по слоям воздуха, а также концентрации аэрозольных частиц в воздушной среде.

Таким образом, универсальный набор радионуклидов, который позволит зафиксировать ядерные события и радиационные аварии, как на региональном уровне, так и в глобальном масштабе, может быть следующим:

– ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ¹³¹I, ¹⁴⁰Ba, ¹³³Xe, ¹³⁵Xe присутствие которых в воздухе может свидетельствовать о ядерном событии (ядерное испытание) или радиационной аварии на предприятия ЯТЦ.

присутствие радионуклидов ⁹⁰Sr, ¹⁰⁶Ru, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Am, ⁹⁹Tc и др. также может дополнительно характеризовать природу ядерного события, связанного с выбросом радиоактивных веществ в окружающую среду;

– радионуклиды ⁷Ве, ²¹⁰Рb и ряд других естественных радионуклидов могут использоваться как вспомогательные, характеризующие изменение климатических условий местности.

В случае ядерной или радиационной аварии либо иного радиационного инцидента, выбросы указанных радионуклидов в различных концентрациях могут фиксироваться на значительных расстояниях от источника. С помощью имеющихся моделей атмосферного переноса и анализа метеорологических данных можно рассчитывать концентрацию радионуклидов в момент выброса. Для этого рассчитывается обратная траектория движения воздушных масс и определяется преимущественное направление ветра [9].

2.2 Методы определения «реперных» радионуклидов в атмосферном воздухе

Специфика исследований воздушной среды заключается в том, что в большинстве случаев требуется определить очень малые количества вещества, измеряемые миллиграммами или их долями. Поэтому, используемые методы должны быть высокочувствительными, точными и быстрыми. Методы определения содержания радиоактивных веществ в воздухе основаны на различных физических и химических явлениях, при этом важное значение имеет порядок осуществления контроля, выбор точек отбора проб, продолжительность и периодичность отбора, оценка результатов измерения загрязнения воздуха.

Для изучения содержания аэрозольных радиоактивных частии в воздухе широко применяются аспирационные методы отбора проб, которые позволяют определять содержание радионуклидов как естественного (²¹⁰Pb, ²¹²Pb и ⁷Be), так и техногенного (²⁴¹Am, ¹³⁷Сs, ¹³¹I, ¹⁴⁰Ва и др.) происхождения. Недостатком метода являются большая трудоемкость при проведении отбора проб, и большое усреднение концентрации определяемого вещества в воздухе за продолжительный период времени. Выбор методики отбора проб зависит от периода полураспада радионуклида (короткоживущие и долгоживущие). Как правило, отбор проб воздуха проводится стационарным аспирационным устройством, производительностью не менее 500 м³/ч. Для определения концентрации воздушных аэрозолей в воздухе используется метод осаждения воздушных аэрозолей на фильтрующий элемент. В качестве фильтрующего элемента для улавливания воздушных аэрозолей хорошо себя зарекомендовали себя фильтры АФА-РМ из метилакрилатного материала, для определения изотопного состава радиоактивных аэрозолей спектрометрическим методом – фильтры АФА-РСП из перхлорвинилового материала [10].

Частота замены фильтрующего элемента выбирается в зависимости от поставленных задач. Общепринятым является метод, когда отбор проб производится не реже 1 раза в сутки, что позволяет оценить динамику изменения концентрации радионуклидов в атмосферном воздухе, но может составлять и больший промежуток времени. При возникновении чрезвычайных ситуаций (аварийные выбросы, радиационные аварии) частота отбора может увеличиваться до 1 раза в час.

Перед проведением лабораторного анализа для определения гамма-излучающих радионуклидов, воздушные фильтры подготавливается с использованием промышленного пресса (прессуются до необходимой геометрии, в соответствии с геометрией используемого спектрометрического комплекса). Метод озоления применять не желательно, во избежание потерь легколетучих элементов. Для определения содержания в пробе у-излучающих радионуклидов проводятся прямые измерения, при определении альфа-, бета-излучающих радионуклидов – выполняется предварительная радиохимическая подготовка. Все подготовленные счетные образцы измеряются на соответствующем α-, β-, и γ-спектрометрическом оборудовании с детекторами из особо чистого германия, типа OPTEC или CANBERRA, с высоким разрешением. Полученные спектры обрабатываются при помощи специальных программных пакетов, что позволяет определить качественный и количественный радионуклидный состав в измеряемом образце. Данный метод позволяет определять содержание радионуклидов как естественного (²¹⁰Pb, ²¹²Pb и ⁷Be и др.), так и техногенного (²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu¹³¹I и ¹⁴⁰Ba и др.) происхождения.

При определении концентрации радиоактивных благородных газов в воздушной среде, атмосферный воздух принудительно пропускают через специальное устройство по очистке, в котором удаляются различного рода загрязнители (частицы пыли, водяных паров и различные химических элементы). Далее производится охлаждение воздуха до температуры, при которой образуется жидкий кислород.

Пробу кислорода путем естественного испарения в газификаторе уменьшают до требуемого объема и затем перерабатывают на специализированной установке, состоящей из газификатора и сорбера с цеолитом. В процессе газификации кислорода, Хе и Кг сорбируются в цеолитовом сорбере. Далее газовая фаза десорбируется с сорбера в спектрометрическую ампулу с активированным углем, который играет роль «ловушки» радона, мешающего при определении концентрации данных радионуклидов.

Вышеописанный метод отбора и анализа проб благородных газов осуществляется при помощи специальных установок. Наиболее современные, из представленных в настоящее время на мировом рынке – это установки SAUNA (Швеция), SPALAX (Франция) и ARIX (Россия).

Системы SAUNA и ARIX позволяют отбирать 2 образца в день, в течение 12 часов общий объемом воздуха на 1 пробу составляет 15 м³. В системе используется спектрометрическое оборудование с функцией регистрации бета-, гамма совпадений.

Принцип работы системы *SPALAX*, разработанной во Франции, основан на отборе 1 образца в сутки объемом до 75 м³. По окончании каждого цикла отбора пробы и окончательной ее очистки, проба передается в счетную систему с германиевым детектором высокого разрешения.

Описанные методы определения аэрозольных радиоактивных частиц и благородных газов в воздухе применяются на станциях международного радионуклидного мониторинга. Эти методы хорошо себя зарекомендовали при выявлении ядерных событий и инцидентов в любой части мира.

Такие системы не требует специальной технической оснащенности для установки, все необходимое оборудование для отбора и анализа благородных газов, твердых аэрозольных частиц может быть размещено внутри 20-футового контейнера. Процесс отбора воздуха и подготовки образцов в данных установках полностью автоматизирован и требует минимального вмешательства оператора.

Однако, необходимо понимать, что при создании станции радионуклидного мониторинга воздуха, необходимо соблюсти все требования, которые были разработаны ОДВЗЯИ. Данные требования диктуют необходимость качественного подхода к выбору места расположения станции мониторинга и регламентирует правила проведения комплексного обследования выбранного участка.

3 Выбор и комплексное обследование участка для размещения станции радионуклидного мониторинга

В связи с тем, что ответственным за эксплуатацию будущей станции радионуклидного мониторинга было назначено РГП «НЯЦ РК», выбор участков для ее расположения осуществлялся на территории данного предприятия. При выборе участков учитывались следующие важные критерии ОДВЗЯИ: площадка для оборудования должна быть размещена на открытом пространстве, хорошо проветриваемом со 4-х сторон; инфраструктура инженерных коммуникаций должна учитывать возможность непрерывной круглосуточной работы оборудования станции; территория вокруг площадки должна быть под круглосуточной охраной, чтобы исключить возможность проникновения посторонних лиц.

Комплексное обследование участков проводилось в соответствии с требованиями ОДВЗЯИ для размещения станций радионуклидного мониторинга, которое заключалось в радиологическом обследовании непосредственно самих участков и территории вокруг них.

3.1 Выбор участка

Предполагаемые участки находятся на равнине, высота над уровнем моря составляет от 118 до 121 м. В 40 км в юго-юго-западном направлении расположен хребет Коския, протяженностью 1500 м с абсолютной отметкой 307 м над уровнем моря. В 120 км на югозапад – хребет Муржик, который объединяет несколько горных массивов, также приурочен к тектонической структуре – главный Чингизский разлом (сотни километров). Самый высокий пик составляет 917,1 м.

На северо-востоке в 400-х метрах протекает р. Иртыш. Истоки Иртыша находятся на границе Монголии и Синьцзян-Уйгурского автономного района Китая, на восточных склонах хребта Монгольский Алтай.

Участки обследования характеризуются резко континентальным климатом. Из-за большой удаленности и отгороженности горными системами теплые и влажные воздушные массы с Атлантического океана доходят трансформированными, потерявшими большую часть влаги, а воздушные массы, проникающие с Северного Ледовитого океана – холодными и сухими. Зима в районе продолжительная, с редкими оттепелями, ветреная, малоснежная, лето – достаточно теплое, весна и осень прохладные, с довольно сильными ветрами, с умеренным количеством осадков. Среднее число дней в году с осадками – 143 дня. Средняя высота снежного покрова – 22,8 см.

В зимнее время года, по многолетним данным, преобладают юго-восточные (38,4%) и южные ветры (16,3%). В летнее время режим ветра резко меняется, преобладают ветры северо-западной (27,4%), западной (16,8%) и северной (14,9%) части горизонта и отмечается повышенная повторяемость штилей.

Идеальным местом для размещения радионуклидной станции является плоский ландшафт на достаточном удалении от высоких препятствий, таких как здания или деревья. Минимальное расстояние от участка размещения станции до возможного препятствия должно быть в пять раз больше высоты купола растительности или препятствия (рисунок 1).



Рисунок 1. Расположение пробоотборного устройства

Согласно указанным критериям на территории г. Курчатов предварительно было выбрано 2 наиболее перспективных участка, на которых возможно размещение радионуклидной станции мониторинга. Схема расположения участков представлена на рисунке 2.

Для оценки возможных препятствий к прохождению воздушных потоков на каждом участке проведена топографическая съемка местности с определением высотной отметки. Построены карты с расстояниями от ближайших зданий и насаждений до участков. Согласно полученным результатам определено, что оба участка по их расположению, удовлетворяют требованиям ДВЗЯИ, близлежащие здания и насаждения не будут оказывать препятствие воздушным массам.

3.2 Радиологическое обследование участков

Для оценки радиоактивного загрязнения окружающей среды, на выбранных участках проведены следующие виды работ: определение ЭРОА и плотности потока радона; измерение МЭД; определение естественных и техногенных радионуклидов в воздухе и почве.

3.2.1 Определение ЭРОА и плотности потока радона

Измерения ЭРОА (эквивалентно равновесная объемная активность) радона и ППР (плотность потока радона) проводились на открытом воздухе в месте предполагаемого размещения радионуклидной станции, в течение календарного года. Периодичность измерения ЭРОА и ППР составляла 1 раз в 10 дней. Измерения ЭРОА и его дочерних продуктов распада проводилось радиометром радона *РАМОН-02*, измерения ППР – радиометром *«Альфарад плюс».* Всего проведено 80 измерений, из которых 40 измерений ЭРОА радона и 40 измерений ППР.

На рисунках 3 и 4 представлена динамика концентрации ЭРОА радона и ППР на исследуемой территории.



Рисунок 2. Расположение участков предполагаемого размещения радионуклидной станции на территории г. Курчатов



Рисунок 3. Динамика концентрации ЭРОА радона на исследуемой территории



Рисунок 4. Динамика концентрации ППР на исследуемой территории

Установлено, что в месте предполагаемого размещения радионуклидной станции среднее значение ЭРОА радона составило 14 Бк/м³, ППР – 26,5 мБк/(м²·с). Проведенные исследования показали, что измеренные значения ЭРОА радона и ППР не превышают значение допустимой среднегодовой ЭРОА радона, равное 100 Бк/м³ и допустимое значение ППР, равное 80 мБк/(м²·с), указанные в гигиенических нормативах [11].

3.2.2 Определение радиометрических параметров

Определение радиометрических параметров (МЭД, плотность потока β-частиц) проводилось в месте отбора проб почвы по 5 точкам – в центре, и по четырем углам, сориентированным по сторонам света. Измерения проводились в соответствии с методическими рекомендациями по радиационной гигиене «Измерения гамма-фона территории и помещений» [12]. Замеры проводились радиометром-дозиметром *МКС-АТ6130* на высоте 1 м. В таблице 1 представлены результаты радиометрических измерений.

Таблица 1. Результаты радиометрических измерений на участках обследования

	Точка	Коорд	цинаты	мэл	Бета, част/ (см²·мин)	
Участок	отбора	широта	долгота	мкЗв/ч		
	центр	50° 45' 11,1"	78° 31' 42,1"	0,11	<10	
Участок 1	северо- запад 50° 45' 12,9"		78° 31' 39,5"	0,10	<10	
	юго-запад	50° 45' 09,4"	78° 31' 39,3"	0,12	<10	
	восток	50° 45' 11,2"	78° 31' 45,2"	0,10	<10	
Участок 2	центр	50° 45' 11,1"	78° 31' 42,0"	0,15	<10	
	северо- запад	50° 45' 10,1"	78° 31' 51,7"	0,12	<10	
	юго-запад	50° 45' 06,7"	78° 31' 51,8"	0,10	<10	
	восток	50° 45' 08,7"	78° 31' 58,0"	0,11	<10	

Измеренные значения мощности эквивалентной дозы (МЭД) на участках обследования составляют: на участке 1 – 0,11 мкЗв/ч, на участке 2 – 0,15 мкЗв/ч. Плотность потока β -частиц на всех участках обследования составляла <10 част/см²·мин. Таким образом, значения МЭД и плотности потока β -частиц в местах предполагаемого размещения радинуклидной станции находятся на уровне природного фона для данной местности.

3.2.3 Определение естественных и техногенных радионуклидов в воздухе

Для оценки уровня радиоактивного загрязнения воздушной среды проведен отбор проб воздушных аэрозолей (твердых аэрозольный частиц) и воздуха для определения содержания радиоактивных благородных газов (РБГ) в воздушной среде. Данные параметры необходимо было определить с целью получения начальных (фоновых) значений на участках обследования. Для отбора проб воздушных аэрозолей использовалась аспирационная установка воздуха «Бриз», производительностью 1500 м³/ч (рисунок 5, а). С целью изучения динамики изменения объемной активности радионуклидов в воздушной среде отбор 6-ти проб воздушных аэрозолей на каждом участке проводился непрерывно на протяжении 3 суток в 3-х кратной повторности. При этом, средний объем прокаченного воздуха через фильтр, для каждой пробы воздуха, составил порядка 75 000 м³. В качестве фильтра использовалась фильтрующий материал $\Phi\Pi\Pi$ 15-1,5.





Рисунок 5. Отбор проб воздушных аэрозолей

Место отбора	Номер повторности	Объемная активность радионуклидов, Бк/м ³					
		²¹⁰ Pb	⁷ Be	²¹² Pb	¹³⁷ Cs		
Участок 1	1	1,5×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴	4,0×10 ⁻³ ± 0,4×10 ⁻³	1,0×10 ⁻² ± 0,1×10 ⁻²	< 4,0×10 ⁻⁶		
	2	1,0×10 ⁻⁴ ± 0,1×10 ⁻⁴	3,0×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	6,0×10 ⁻³ ± 0,6×10 ⁻³	< 4,0×10 ⁻⁶		
	3	< 2,0×10-5	2,5×10 ⁻³ ± 0,3×10 ⁻³	6,0×10 ⁻³ ± 0,6×10 ⁻³	< 2,5×10-6		
Участок 2	1	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴	5,0×10 ⁻³ ± 0,5×10 ⁻³	2,0×10 ⁻² ± 0,2×10 ⁻²	< 1,5×10 ⁻⁶		
	2	2,0×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴	5,0×10 ⁻³ ± 0,5×10 ⁻³	6,5×10 ⁻³ ± 0,7×10 ⁻³	< 3,0×10 ⁻⁶		
	3	1,5×10 ⁻⁴ ± 0,2×10 ⁻⁴	4,0×10 ⁻³ ± 0,4×10 ⁻³	6,5×10 ⁻³ ± 0,7×10 ⁻³	< 4,5×10 ⁻⁶		

Таблица 2. Содержание естественных и техногенных радионуклидов в воздухе на участках обследования

В рамках изучения уровня и динамики концентрации РБГ в воздушной среде в местах предполагаемого размещения радионуклидной станции проведен отбор 4-х проб воздуха. В качестве пробоотборного оборудования использовалась криогенная установка «Пурга», позволяющая производить отбор проб газоаэрозольных форм различных радиоактивных и нерадиоактивных примесных фракций, содержащихся в атмосферном воздухе (рисунок 5, б).

Анализ образцов проводился на гамма-спектрометрической установке *CANBERRA* с полупроводниковым детектором из особо чистого германия. Время экспозиции каждой пробы составляло 120 мин, погрешность измерений – не более 10%.

В таблице 2 представлено содержание естественных (²¹⁰Pb, ⁷Be, ²¹²Pb) и техногенных (¹³⁷Cs) радионуклидов в образцах воздушных аэрозолей.

Результаты проведенных работ показали, что содержание техногенного радионуклида ¹³⁷Cs в атмосферном воздухе находится ниже уровня обнаружения (<4,5·10⁻⁶ Бк/м³). Содержание естественных радионуклидов находится на уровне фоновых значений для данного региона Казахстана.

По результатам исследований концентрации РБГ на обследуемых участках установлено, что их объемная активность в воздушной среде составила: ⁴¹Ar – <3,7 Бк/м³, ^{85m}Kr – <1,7 Бк/м³, ⁸⁷Kr – <3,1 Бк/м³, ⁸⁸Kr – <5,0 Бк/м³, ¹³⁵Xe – <1,5 Бк/м³, ¹³⁸Xe – <4,8 Бк/м³. Полученные значения соответствуют уровню природного радиационного фона для данного региона Казахстана.

3.2.4 Определение естественных и техногенных радионуклидов в почве

Для оценки радиоактивного загрязнения на поверхности, в местах предполагаемого размещения радионуклидной станции проведен отбор проб почвы. Для получения более полной картины радиационной ситуации на участках обследования, точки отбора проб располагались в центре участка (место предполагаемого размещения станции) и на расстоянии порядка 100 м в северо-западном, юго-западном и восточном направлениях от него. Отбор проб почвы проводился на глубину 0,15 см, масса пробы составляла 0,5 кг.

Отобранные пробы почвы подготавливались в лабораторных условиях и измерялись гамма-спектрометрическим методом на содержание естественных $(^{226}$ Ra, 232 Th, 40 K) и техногенных (137 Cs и 241 Am) радионуклидов. В таблице 3 представлены результаты удельной активности радионуклидов на участках обследования.

Таблица 3.	Удельная активность радионуклидов в почве
	на участках обследования

Место	Точка	Удельная активность радионуклидов, Бк/кг					
отбора	отбора	²²⁶ Ra	²³² Th	40 K	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	
	центр	8±1	20 ± 2	900 ± 100	2 ± 1	< 1	
Участок	северо- запад	10 ± 1	20 ± 2	950 ± 100	2 ± 1	< 1	
1	юго- запад	10 ± 1	18 ± 2	900 ± 100	< 1	< 1	
	восток	20 ± 2	20 ± 2	850 ± 100	2 ± 1	< 1	
	центр	15 ± 2	25 ± 3	850 ± 100	5 ± 1	< 1	
Участок	северо- запад	10 ± 1	18 ± 2	800 ± 100	5 ± 1	< 1	
2	юго- запад	15 ± 2	15 ± 2	850 ± 100	3 ± 1	< 2	
	восток	7 ± 1	30 ± 3	850 ± 100	< 1	< 1	

Согласно полученным результатам, удельная активность техногенных радионуклидов ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am составила менее предела обнаружения используемого аппаратурно-методического обеспечения. Концентрация естественных и техногенных радионуклидов в почве на исследуемой территории находится на уровне фона глобальных выпадений для данного региона Казахстана.

Выводы и заключение

В результате выполнения данной работы рассмотрены и изучены методы определения радионуклидов в воздушной среде. Рассмотрено оборудование для определения радиоактивных аэрозольных частиц и благородных газов. Изучены возможные источники радионуклидов в воздухе и вспомогательные контролирующие параметры. На основе результатов комплексного обследования выбраны и обследованы участки для размещения станции радионуклидного мониторинга в г. Курчатова на базе РГП НЯЦ РК. Изучены технические характеристики оборудования и подготовлены рекомендации для подготовки соответствующей инфраструктуры.

Необходимо понимать, что при создании системы радионуклидного мониторинга основными условиями для качественного функционирования методов определения радионуклидов в воздухе является непрерывность получения данных, первичная обработка, анализ и передача данных для сбора, анализа и статистической обработки всего полученного массива. В этой связи, в дальнейшем, после установки станции на место, будут проведены работы по созданию системы контроля эксплуатационных параметров основного, пробоотборного и лабораторного оборудования, а также по защите от проникновения, как с использованием защитных ограждений, так и с помощью электронных средств, встроенных в оборудование (выключатели, сенсоры и др.).

После того, как радионуклидная станция будет введена в эксплуатацию и полностью готова к передаче данных в Международный центр данных (МЦД), необходимо пройти сертификацию. В ходе этого процесса будет определено соответствие станции всем техническим параметрам, в том числе требованиям, предъявляемым к аутентификации данных и их передаче по каналу Инфраструктуры глобальной связи (ИГС) в МЦД ОДВЗЯИ в г. Вена, Австрия. С этого момента станция будет являться эксплуатационным объектом Международной сети мониторинга.

Работа выполнена в рамках темы «Разработка системы радионуклидного мониторинга ядерных событий и радиационных аварий» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Wernspergera B, Schlosserb C. Noble gas monitoring within the International monitoring system of the comprehensive nuclear test-ban treaty // Radiation Physics and Chemistry. 2004. Vol. 71. P. 775–779.
- Гордиенко В. А., Показеев К. В., Старкова М. В. Экология. Базовый курс для студентов небиологических специальностей: Учебное пособие. – СПб.: Издательство «Лань», 2014. – С. 483–504.
- Панченко С.В., Линге И.И., Крышев И.И., Сазыкина Т.Г., Гераськин С.А., Радиоэкологическая обстановка в регионах расположения предприятий Росатома. // Под общей редакцией Линге И.И. и Крышева И.И. – М.: «САМ полиграфист», 2015. – 296 с.
- 4. Leppänen A., Mattila A., Kettunen M., Riitta, Kontro R., Artificial radionuclides in surface air in Finland following the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident // Journal of Environmental Radioactivity. 2013. Vol. 126. P. 73–83.
- Дубасов, Ю. Г. Содержание радионуклидов ⁸⁵Кг и Хе в атмосферном воздухе Северо-Западного региона России в 2006– 2008 гг. / Ю. В. Дубасов, Н. С. Окунев // Труды Радиевого института им. В. Г. Хлопина. – Т. XV. – Санкт-Петербург, 2011. – с. 84.
- Salbu, B. Challenges associated with the behaviour of radioactive particles in the environment / B. Salbu, V. Kashparov, O. Christian Lind [et al] // Journal of Environmental Radioactivity. – 2018. – Vol. 186. – P. 101–115.
- Warr, O. Tracing ancient hydrogeological fracture network age and compartmentalisation using noble gases // O. Warr, B. S. Lollar, J. Fellowes [et al] // Geochimica et Cosmochimica Acta. – 2018. – Vol. 222. – P. 340–362.
- Axelsson, A., Ringbom A. The noble gas releases from Fukushima some implications and reflections // CTBTO SPECTRUM 20. - 2013. – P. 16.
- Ngan F., Stein A., Finn D., Eckman R., Dispersion simulations using HYSPLIT for the Sagebrush Tracer Experiment // Atmospheric Environment. – 2018. – Vol.186. – P. 18–31.
- 10. Физико-химические методы исследования вредных веществ в воздухе рабочей зоны. С. 1. Режим доступа: http://lib.kstu.kz:8300/tb/books/2018/RAiOT/Baytuganova i dr/Teopuя/5.htm.
- 11. Гигиенические нормативы «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности» / Утверждены приказом министра национальной экономики Республики Казахстан от 27 февраля 2015 года – №155.
- 12. Проведение радиационно-гигиенического обследования территории и жилых и общественных зданий. Методика измерения гамма-фона территории и помещений (приложение № 4 к приказу Председателя Комитета государственного санитарно-эпидемиологического надзора от 8 сентября 2011 года № 194 «Об утверждении «Методических рекомендаций по радиационной гигиене»).

ҚР ҰЯО-ДА ЯДРОЛЫҚ ОҚИҒАЛАР МЕН РАДИАЦИЯЛЫҚ АПАТТАРДЫҢ РАДИОНУКЛИДТІК МОНИТОРИНГ ЖҮЙЕСІН ДАМЫТУ

Д.В. Турченко, О.Н. Ляхова, А.А. Круглыхин

КР ҰЯО «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада ядролық оқиғалар мен радиациялық апаттарды тіркеу мақсатында Қазақстан Республикасында мониторингілеудің радионуклидтік станциясын құру мәселесі қаралды. Ауа ортасындағы радионуклидтерді анықтау әдістері және ауа сынамаларын іріктеу және талдау жүргізу үшін негізгі және қосымша жабдықтарды таңдауға ұсыныстар берілген. ЯСЖТШ талаптарына сәйкес, ҚР ҰЯО базасында Курчатов қаласында радионуклидтік мониторингілеу станциясын орналастыру үшін учаскені таңдау қарастырылды. Станцияны орналастыру жоспарланған жердің ауа ортасындағы табиғи және техногендік радионуклидтердің құрамы туралы деректер келтірілді.

DEVELOPMENT OF A RADIONUCLIDE MONITORING SYSTEM OF NUCLEAR EVENTS AND RADIATION ACCIDENTS IN NNC RK

D.V. Turchenko, O.N. Lyakhova, A.A. Kruglykhin

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article addresses the issue of building a radionuclide monitoring station in the Republic of Kazakhstan in order to register nuclear events and radiation accidents. Techniques for determining radionuclides in the air environment and recommendations for the choice of the main and auxiliary equipment to sample and analyze air are provided. The choice of a site for deploying the radionuclide monitoring station in Kurchatov city on the basis of NNC RK in accordance with CNTBT organization's requirements is addressed. Data on the content of naturally occurring and man-made radionuclides in the air environment at the planned station location is given.
УДК 519.876.5

РАСЧЕТ ТЕПЛОВОГО СОСТОЯНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ ИСПЫТАНИЙ В РЕАКТОРЕ ИВГ.1М

Сураев А.С., Иркимбеков Р.А., Понкратов Ю.В.

Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе показан подход к выполнению комплексных расчетных исследований, направленных на обоснование требуемых режимов испытания экспериментального устройства в ходе реакторного пуска. В основе этих исследований лежит метод компьютерного моделирования сложных нейтронно-физических и теплофизических процессов. Данный метод реализуется путем использования двух специализированных программ – *MCNP6* и *ANSYS Fluent*.

Ключевые слова: экспериментальное устройство, компьютерное моделирование, реактор ИВГ.1М, МСNP6, ANSYS Fluent.

Введение

На этапе подготовки экспериментальных устройств к реакторным испытаниям одной из первостепенных задач является проведение серии расчетных исследований, включающих в себя расчеты по обоснованию соответствия конструкции испытательного устройства целям эксперимента, выбору режимов испытаний, исследованию штатных и гипотетических аварийных режимов его работы. Результатом таких расчетов становятся нейтронно-физические, тепловые, прочностные и гидродинамические характеристики элементов конструкции устройства и рабочих тел.

Особенностью данного исследования является наличие специфических требований к тепловому состоянию втулки экспериментального устройства. А именно, обеспечение заданного температурного градиента между ее ребрами, который не должен превышать 4 К во время проведения реакторного испытания. Для решения такой задачи применены методы численного моделирования, реализованные в программе ANSYS Fluent [1]. В данной статье будет продемонстрирован весь цикл нейтронно-физических и тепловых расчетных исследований предложенного экспериментального устройства. Проведена и обоснована модернизация исходной конструкции устройства, обеспечивающая требуемое тепловое состояние. Основным отличием исходной конфигурации от модернизированной является переориентация патрубков подачи и отвода охлаждающего газа, нивелирующая аксиальный градиент температуры во втулке.

Цель исследования: обеспечить достижение требуемого теплового состояния экспериментального устройства во время его облучения в реакторе ИВГ1.М.

Задачи исследования логически разделены на две группы, относящиеся к нейтронно-физическим и тепловым:

1) нейтронно-физические расчеты исходной и модернизированной конфигурации устройства:

 определить объемное распределение удельной мощности в материалах экспериментального устройства при работе реактора ИВГ.1М на стационарном уровне мощности 6 МВт;

 рассчитать изменение запаса реактивности реактора ИВГ.1М во время его работы на стационарном уровне мощности 6 МВт;

2) моделирование теплового состояния исходной и модернизированной конфигурации устройства:

 получить температурное поле втулки при заданном энерговыделении, геометрических и материальных параметрах;

 определить расход теплоносителя, требуемый для поддержания температуры стенки ампулы не более 200±5 °C на уровне центра активной зоны;

 оценить возможность проведения эксперимента с более высокими температурами экспериментального устройства.

 подбор материально-геометрических параметров устройства для обеспечения разницы значений температуры в пазах и ребрах втулки на уровне 4 К:

выбрать оптимальный материал втулки (сталь, медь);

провести расчеты для трех размеров втулок (43 мм, 47 мм и 50 мм);

ИСХОДНАЯ КОНФИГУРАЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬ-НОГО УСТРОЙСТВА

Описание устройства

Экспериментальное устройство в его исходной конфигурации представлено на рисунке 1. Оно состоит из корпуса, втулки, чехла охлаждения и патрубков подачи и отвода охлаждающего газа (азот). В исходной конфигурации оба патрубка расположены на верхней крышке, причем патрубок подачи расположен в центре крышки, а патрубок отвода смещен в сторону боковой стенки. Данные патрубки обеспечивают охлаждение втулки и корпуса во время испытаний.



1 – корпус, 2 – втулка, 3 – ребра втулки, 4 – датчик, 5 – термопары, 6 – кожух охлаждения

Рисунок 1. Исходная конфигурация устройства

Втулка представляет собой цилиндрический оребренный радиатор с шестигранным отверстием в центре. Материал втулки и ее высота должны быть обоснованы расчетным путем. В качестве материала рассматривается сталь и медь. Высота втулки может варьироваться от 43 до 50 мм.

Расчет нейтронно-физических характеристик исходной конфигурации экспериментального устройства

Расчеты выполнялись с использованием расчетного кода *MCNP6* [2] и библиотек ядерных констант *ENDF/B-VII.0.* Для проведения расчетов была разработана объединенная модель (рисунок 2), созданная на базе модели ИВГ.1М [3, 4] и расчетной модели экспериментального устройства (рисунок 1).

На первом этапе были выполнены нейтронно-физические расчеты, результаты которых послужили входными данными для теплового моделирования. Нейтронно-физический расчет проводится при следующих граничных условиях:

 активная зона реактора ИВГ.1М состоит из 28 водоохлаждаемых технологических каналов (ВОТК) с топливом высокого обогащения и 2 ВОТК с низкообогащенным топливом [3];

 температура реактора ИВГ.1М принята 21 °С (в процессе пуска может повышаться до 50 °С на входе в реактор);

 положение регулирующих барабанов принято 124° (в процессе работы реактора положение регулирующих барабанов может достигать 180°);

 стационарный уровень мощности реактора ИВГ.1М 6 МВт;

 стационарный уровень мощности реактора определяется энергией деления урана и энергией активации не топливных элементов активной зоны.



а) продольное сечение



б) поперечное сечение

Рисунок 2. Объединенная расчетная модель реактора ИВГ.1М и экспериментального устройства

Высотное (18 частей) и азимутальное (6 секторов) распределение энерговыделения по материалам экспериментального устройства, обусловленного поглощением γ-излучения и нейтронов, в процессе расчета определялось согласно схеме, представленной на рисунке 3.

По результатам нейтронно-физического расчета неравномерность высотного распределения энерговыделения во втулке составляет около 8%, а азимутальная неравномерность распределения энерговыделения, обусловленная несимметричностью активной зоны из-за наличия двух ВОТК с низкообогащенным топливом [3], составила меньше 0,3% и находится на уровне статистической погрешности расчета. В связи с этим азимутальная неравномерность распределения энерговыделения в расчетах не учитывалась.



Рисунок 3. Схема разбивки экспериментального устройства для нахождения высотного и азимутального распределения энерговыделения в материалах

В таблице 1 представлены результаты расчета среднего распределения энерговыделения в материалах корпуса устройства и втулки при работе реактора на стационарном уровне мощности реактора ИВГ.1М, равной 6 МВт.

Таблица 1. Среднее энерговыделение в материалах корпуса и втулки

	Удельная мощность, Вт/м ³	Мощность, Вт
Стальные элементы	10,4·10 ⁶	687
Стальная втулка	10,4·10 ⁶	301
Медная втулка	12,2·10 ⁶	353

Расчет теплового состояния исходной конфигурации экспериментального устройства

Основной задачей теплогидравлического расчета на данном этапе являлось определение теплового состояния устройства при установившемся режиме теплообмена между втулкой и теплоносителем на стационарном уровне мощности реактора. В результате данного расчета необходимо было подтвердить реализуемость требуемых условий испытаний с рассматриваемой конструкцией устройства.

Для выполнения поставленной задачи с использованием программного пакета *ANSYS* [5] была разработана трехмерная модель, позволяющая произвести расчет необходимых параметров с учетом распределения поля скоростей теплоносителя, соответствующего нужным значениям массового расхода азота в кожухе охлаждения устройства, и заданного распределения удельной мощности в материалах конструкции экспериментального устройства. Расчетная сетка модели показана на рисунке 4. Сетка расчетной модели экспериментального устройства включала в себя 961 077 призматических элементов.



Рисунок 4. Сетка расчетной модели исходной конфигурации экспериментального устройства

Для теплогидравлического расчета среднее распределение удельной мощности в материалах корпуса экспериментального устройства и втулке принято согласно таблице 1.

Исходные данные для проведения теплогидравлических расчетов представлены в таблице 2.

Таблица 2.	Исходные	данные д	ля	теплогидравлических
		расчето	<i>6</i>	

Параметр	Значение
Теплоноситель	азот
Температура теплоносителя на входе, К	300,0
Расход теплоносителя, кг/с	0,1
Давление теплоносителя на входе, МПа	1,0

Расход теплоносителя определен в результате предварительных расчетов с использованием значений энерговыделения в конструкционных элементах устройства и в кожухе охлаждения, таким образом, что температура стенки устройства не превышает 150 °С на уровне центра активной зоны реактора ИВГ.1М. Это на 50 К меньше значения определенного в задачах исследования. Данный расход также обеспечивает турбулентное течение теплоносителя в тракте охлаждения (Re > 10000). Учет турбулентное сти потока проведен с использованием стандартной k - ε модели. На внешней стенке модели заданы условия конвективного теплообмена с температурой окружающей среды 300 К и коэффициентом теплоотдачи 5 Вт/(м²K).

Свойства материалов, использованные при проведении расчетов, заимствованы из справочных источников [6, 7].



Рисунок 5. Распределение температуры во втулке исходной конфигурации экспериментального устройства

Распределение температуры во втулке показано на рисунке 5. По результатам предварительных теплогидравлических расчетов конструкция устройства исходной конфигурации не позволяет обеспечить равномерное распределение температуры на ребрах и в пазах втулки. Полученная неравномерность распределения температуры составила ~12 К, что превышает допустимые значения. При этом температура стенки устройства составила менее 370 К.

Анализ результатов нейтронно-физических и теплофизических расчетов исходной конфигурации экспериментального устройства

На основании проведенных расчетов можно сделать следующие выводы и дать некоторые рекомендации:

– неравномерность высотного распределения энерговыделения во втулке составила около 8 %, а азимутальная неравномерность распределения энерговыделения, обусловленная неравномерностью распределения обогащения топлива в активной зоне реактора [3], составила меньше 0,3%. С целью снижения высотной неравномерности распределения энерговыделения рекомендуется установить втулку в область с наименьшей неравномерностью распределения потока γ-квантов;

– в конструкции устройства с боковым подводом теплоносителя неравномерность распределения температуры в пазах втулки (рисунок 5) составляет 12 К, что превышает допустимые значения. Рекомендуется с целью выравнивания азимутальной неравномерности распределения температуры в пазах втулки использовать конструкцию экспериментального устройства с нижним центральным подводом теплоносителя (рисунок 6).

МОДЕРНИЗИРОВАННАЯ КОНФИГУРАЦИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА

Описание экспериментального устройства

На основании полученных результатов расчета исходной конфигурации экспериментального устройства было принято решение о внесении изменений в конструкцию устройства. А именно выполнен перенос выходного патрубка охлаждающего газа с целью выравнивания аксиального распределения потока теплоносителя, а также проведено высотное смещение устройства относительно центра активной зоны реактора на «-50 мм».

Внешний вид модернизированной конструкции представлен на рисунке 6.



1 – корпус, 2 – втулка, 3 – ребра втулки, 4 – датчик, 5 – термопара, 6 – кожух охлаждения, 7 – труба подачи азота

Рисунок 6. Схема модернизированного экспериментального устройства

Тепловой расчет модернизированного экспериментального устройства со стальной и медной втулкой

Для подтверждения возможности проведения исследований с конструкцией экспериментального устройства с нижним центральным подводом теплоносителя был проведен теплогидравлический расчет со средним распределением энерговыделения в материалах корпуса экспериментального устройства и втулки согласно таблице 1 с втулками, выполненными из стали и меди.



Рисунок 7. Распределение температуры в медной втулке



Рисунок 8. Распределение температуры в стальной втулке

Распределение температуры в медной втулке с использованием модернизированной конфигурации экспериментального устройства показано на рисунке 7, стальной – на рисунке 8.

По результатам тепловых расчетов получено, что при использовании стальной втулки в конфигурации модернизированного устройства разница между максимальной и минимальной температурой, фиксируемой в пазах втулки, составит около 9 К, при этом радиальная неравномерность в пазах превышает 10 К (рисунок 8). Данная неравномерность не удовлетворяет поставленным требованиям, так как более чем в два раза превосходит эту величину для медной втулки.

Таким образом, дальнейшие расчеты по определению теплогидравлических параметров принято проводить для модернизированной конфигурации устройства с использованием втулки, выполненной из меди марки M1.

Расчет нейтронно-физических характеристик модернизированного экспериментального устройства

С целью снижения высотной неравномерности распределения энерговыделения во втулке было решено установить устройство таким образом, чтобы центр втулки находился на 50 мм ниже центра активной зоны. Согласно поставленных задач, необходимо провести расчеты для трех размеров втулок (43 мм, 47 мм и 50 мм), при этом количество и высота пазов в ней остается без изменения. На рисунке 9 представлена модернизированная схема внутриреакторного экспериментального устройства с применением втулок различной высоты. Внешний вид нейтронно-физической модели модернизированного устройства соответствует показанному на рисунке 2.

Как и прежде расчеты выполнялись с использованием расчетного кода *MCNP6* с библиотекой *ENDF/B-VII.0*. Для проведения расчетов была разработана объединенная модель, созданная на базе модели ИВГ.1М [3, 4] и расчетной модели экспериментального устройства. Модель была разбита на сектора по радиусу и высоте для вычисления высотного и азимутального распределения энерговыделения аналогично показанному на рисунке 3.

В процессе нейтронно-физического расчета определено влияние устройства на реактивность реактора, которая составила 0,37±0,05 β_{эфф} без учета влияния датчиков и коммуникаций испытательного устройства. Средний поток тепловых нейтронов в пазах медной втулки 7,58·10¹³ н/см³·с. Средний поток γ-частиц 2,77·10¹⁴ γ/см³·с.

РАСЧЕТ ТЕПЛОВОГО СОСТОЯНИЯ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОГО УСТРОЙСТВА ДЛЯ ИСПЫТАНИЙ В РЕАКТОРЕ ИВГ.1М



Рисунок 9. Варианты модернизированного экспериментального устройства с различной высотой втулки

Таблица 3. Распределение энерговыделения для трех
вариантов экспериментального устройства с разной
высотой медной втулки

Слой по высоте,	Удельная мощность, 10 ⁶ Вт/м ³			
(рисунок 3)	вариант 1	вариант 2	вариант 3	
5	12,77	12,77	12,79	
6	12,80	12,83	12,83	
7	12,71	12,72	12,67	
8	12,69	12,73	12,73	
9	12,75	12,75	12,73	
10	12,78	12,66	12,68	
11	12,71	12,65	12,64	
12	12,64	12,60	12,66	
13	12,63	12,61	12,62	
14	12,64	12,59	12,65	
15	12,60	12,57	12,59	
16	12,46	12,42	12,41	

В таблице 3 представлены результаты распределения энерговыделения для трех вариантов экспериментального устройства с разной высотой медной втулки. Погрешность расчета удельной мощности энерговыделения материалов экспериментального устройства составило менее 0,04 · 10⁶ Вт/м³.

Расчет теплофизических характеристик модернизированного экспериментального устройства

Основными задачами данного теплогидравлического расчета экспериментального устройства являлись:

 определение теплового состояния экспериментального устройства с применением втулки, выполненной из меди М1, при установившемся режиме теплообмена между втулкой и теплоносителем на стационарном уровне мощности реактора; определение теплового состояния экспериментального устройства при возможном снижении расхода теплоносителя через кожух охлаждения;

 определение времени достижения температуры разрушения образцов при аварийном останове расхода теплоносителя.

Для выполнения поставленных задач с использованием программного пакета ANSYS [5] разработаны трехмерные расчетные модели, позволяющие произвести расчет необходимых параметров с учетом распределения поля скоростей теплоносителя в устройстве, соответствующего нужным значениям массового расхода азота в кожухе охлаждения устройства и заданным распределениям энерговыделения в материалах конструкции экспериментального устройства. Расчетная сетка модерии показана на рисунке 10. Расчетная сетка модернизированной конструкции включала в себя 6 084 754 призматических элементов с минимальным линейным размером элементов 0,5 мм.



Рисунок 10. Сетка расчетной модели конструкции модернизированного устройства

Расчетное обоснование высоты медной втулки

Для теплогидравлического расчета принималось высотное распределение энерговыделения во втулке, приведенное в таблице 3.

Исходные данные для проведения теплогидравлических расчетов аналогичны тем, которые были приняты для исходной конфигурации устройства. На внешней стенке модели заданы условия конвективного теплообмена с температурой окружающей среды 300 К и коэффициентом теплоотдачи 5 Вт/(м²К). Свойства материалов, использованные при проведении расчетов, представлены в справочной литературе [6, 7]. Распределение температуры в медной втулке с различными размерами по высоте представлено на рисунках 11–13.

В таблице 4 приведены рассчитанные тепловые параметры медной втулки при различной ее высоте. Минимальная разница значений температуры в пазах радиатора составляет 2,6 К для втулки высотой 43 мм.



Рисунок 11. Распределение температуры в медной втулке высотой 43 мм с расходом теплоносителя 100 г/с



фронтальный вид

вертикальное сечение по центру втулки

вид сверху





Рисунок 13. Распределение температуры в медной втулке высотой 50 мм с расходом теплоносителя 100 г/с

T		Высота, мм			
тепловые параметры	43	47	50		
Разница температуры в пазах радиатора, К	2,6	2,8	3,1		
Максимальная температура радиатора, К	361,3	362,0	363,2		
Максимальная температура устройства, К	360,3	361,0	362,3		
Температура азота на выходе, К	309,2	309,6	309,8		

Таблица 4. Тепловые параметры медной втулки
в зависимости от высоты

По результатам расчетов теплогидравлических параметров экспериментального устройства с использованием втулки, выполненной из меди М1 видно, что для всех трех вариантов конфигурации устройства разница температуры в пазах втулки не превысит 4 К (рисунки 11–13). Следовательно, высота верхнего и нижнего слоя втулки, расположенной над и под пазами, не оказывает воздействия на высотный градиент температуры.

Расчетное обоснование режима охлаждения втулки

Одной из задач проведения теплогидравлических расчетов является моделирование возможности проведения эксперимента с более высокими температурами экспериментального устройства. Данная цель может быть достигнута при снижении расхода теплоносителя через кожух охлаждения устройства.

Для проведения расчетов по определению теплового состояния устройства была использована трехмерная сеточная модель экспериментального устройства (рисунок 10) с высотой медной втулки 43 мм. Расчет проведен для значений расходов 20 г/с, 5 г/с и 3 г/с. Распределение температуры в медной втулке при различных расходах теплоносителя представлены на рисунках 14–16.

В таблице 5 представлены тепловые параметры медной втулки высотой 43 мм при различных значениях расхода теплоносителя через устройство.

Таблица 5. Тепловые параметры медной втулки высотой
43 мм в зависимости от расхода теплоносителя

	Расход теплоносителя, г/с			
тепловые параметры	100	20	5	3
Разница температуры в пазах радиатора, К	2,6	3,9	7,0	9,0
Максимальная температура радиатора, К	361,3	473,8	607,5	695,3
Максимальная температура устройства, К	360,3	473,0	606,8	701,3
Температура азота на выходе, К	309,2	346	481,6	597,3



фронтальный вид

вертикальное сечение по центру втулки

вид сверху

Рисунок 14. Распределение температуры в медной втулке высотой 43 мм с расходом теплоносителя 20 г/с



Рисунок 15. Распределение температуры в медной втулке высотой 43 мм с расходом теплоносителя 5 г/с



Рисунок 16. Распределение температуры в медной втулке высотой 43 мм с расходом теплоносителя 3 г/с

Анализ результатов нейтронно-физических и теплофизических расчетов модернизированной конфигурации экспериментального устройства

По результатам расчетов модернизированной конструкции внутриреакторного экспериментального устройства для испытания радиационной стойкости материалов в реакторе ИВГ.1М можно сделать следующие выводы и рекомендации:

подтверждена возможность проведения исследований с конструкцией экспериментального устройства с нижним центральным подводом теплоносителя при использовании втулки, выполненной из меди М1, при этом использование стальной втулки 12X18H10T в данном виде исследований не рекомендуется, так как разница между максимальной и минимальной температурой, фиксируемой в пазах втулки, составит около 9 К, при этом радиальная неравномерность в пазах превышает 10 К;

– определены теплогидравлические параметры для трех вариантов медной втулки, различной высоты (43, 47 и 50 мм) при одинаковом расходе азота 100 г/с в тракте охлаждения устройства. Во всех трех вариантах конфигурации медного радиатора в устройстве разница температуры в пазах втулки не превысит 4 К, что полностью соответствуют поставленным требованиям. Влияние высоты радиатора на результаты минимальное, а значит любой из рассмотренных вариантов может быть использован для реакторных экспериментов;

– определено тепловое состояния экспериментального устройства при различном расходе теплоносителя в тракте охлаждения экспериментального устройства (расход азот 100, 20, 5 и 3 г/с). При реализации данных режимов охлаждения можно регулировать температуру медной втулки в диапазоне от 360 К до 700 К;

 требования, предъявляемые к выполнению реакторного эксперимента с экспериментальным устройством, достигаются в варианте конструкции устройства с нижним центральным расположением патрубка подачи азота в кожух охлаждения при расходе 100 г/с и использовании медной втулки любой из рассмотренных конфигураций (43 мм, 47 мм или 50 мм).

При проведении теплогидравлических расчетов во внимание брались общие геометрические и материальные параметры устройства, без учета технологических допусков. Нарушение соосности или округлости внешней стенки втулки и стальной стенки экспериментального устройства до 0,1 мм приведет к изменению проходного сечения по окружности экспериментального устройства, но на распределение температуры это не окажет видимого воздействия.

Положение оптических волокон в экспериментальном устройстве не бралось во внимание. Тонкие волокна должны быстро нагреваться до температуры окружающего материала, вне зависимости от энерговыделения. При размещении материалов в вакууме в условиях облучения γ-частицами и нейтронами они будут разогреваться до полного разрушения. Таким образом, оптические волокна, идущие к медному радиатору, должны иметь контакт с охлаждаемыми поверхностями на всем протяжении в активной зоне.

Выводы

В рамках данной работы проведена серия нейтронно-физических и тепловых расчетов двух конфигураций экспериментального устройства. При этом достигнуты результаты, отвечающие поставленным требованиям. Представлены расчетные модели для программ MCNP6 и ANSYS Fluent. Определено высотное и азимутальное энерговыделение в материалах экспериментального устройства для двух вариантов конфигурации устройства. Продемонстрированы возможности численного моделирования для решения тепловых задач, связанных с выбором и обоснованием оптимальной конструкции устройства. Показано что требования, предъявляемые к выполнению реакторного испытания с экспериментальным устройством, достигаются в варианте модернизированной конфигурации с нижним центральным расположением патрубка подачи азота в чехол охлаждения при расходе 100 г/с и использовании медной втулки. При этом высота втулки может быть выбрана любой из диапазона 43-50 мм. Выполнена оценка возможности увеличения температуры устройства путем снижения расхода охлаждающего газа до 3 г/с. Расчеты показали, что это возможно, но уменьшение расхода будет сопровождаться увеличением градиента температуры.

По результатам проведенных исследований определены все необходимые параметры эксперимен-

Литература

- 1. ANSYS Fluent User's Guide, Release 13.0; Ansys, Inc.; November, 2010.
- 2. MCNP6 Monte Carlo N-Particle Transport Code System, MCNP6.1. LANL, 2013.
- Irkimbekov, R.A., Zhagiparova, L.K., Kotov, V.M. et al. Neutronics Model of the IVG.1M Reactor: Development and Critical-State Verification. Atomic Energy 127, 69–76 (2019). https://doi.org/10.1007/s10512-019-00587-1.
- 4. Иркимбеков Р.А., Жагипарова Л.К., Вурим А.Д., Котов В.М., Прозорова И.В. Компьютерная модель реактора ИВГ.1М
- для стационарных нейтронно-физических расчетов. А.с. № 2757 РК, 24.08.2018.ИВГ.1М модель для НФР.
- 5. ANSYS release 14.5 Documentation for ANSYS WORKBENCH: ANSYS Inc. Электрон. дан. и прогр. [Б. м.], 2014.
- 6. Чиркин В.С. Теплофизические свойства материалов ядерной техники: М., Атомиздат, 1968. 484 с.
- 7. Сорокин В.Г. Марочник сталей и сплавов: М, Машиностроение, 1989. 640 с.

ИВГ.1М РЕАКТОРЫНДА СЫНАУЛАРҒА ЭКСПЕРИМЕНТАЛДЫ ҚҰРЫЛҒЫСЫНЫҢ ЖЫЛУ КҮЙІН ЕСЕПТЕУІ

А.С. Сураев, Р.А. Иркимбеков, Ю.В. Понкратов

ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада реакторды іске қосу кезінде тәжірибелік қондырғының қажетті сынақ режимдерін негіздеуге бағытталған күрделі жобалау зерттеулерін жүргізуге көзқарас көрсетілген. Бұл зерттеулердің негізі күрделі нейтронды-физикалық және термофизикалық процестерді компьютерлік модельдеу әдісі болып табылады. Бұл әдіс екі арнайы бағдарламаны – MCNP6 және ANSYS Fluent көмегімен жүзеге асырылады.

Кілт сөздер: тәжірибелік құрылғы, компьютерлік модельдеу, ИВГ.1М реакторы, MCNP6, ANSYS Fluent.

CALCULATION OF THE THERMAL STATE OF THE EXPERIMENTAL DEVICE FOR TESTS IN THE IVG.1M REACTOR

A.S. Surayev, R.A. Irkimbekov, Yu.V. Ponkratov

Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper shows an approach to performing complex design studies aimed at substantiating the required test modes of an experimental device during a reactor launch. The basis of these studies is the method of computer simulation of complex neutron-physical and thermal processes. This method based on two specialized programs *MCNP6* and *ANSYS Fluent*. *Keywords:* experimental device, computer modeling, IVG.1M test facility, MCNP6 code, ANSYS Fluent.

тального устройства. Обеспечен заданный температурный градиент на наиболее ответственном элементе, обоснован выбор конструкции, материала, расположения в реакторе и расхода охлаждающего газа. Таким образом, завершен этап расчетных исследований экспериментального устройства для испытаний на реакторе ИВГ.1М.

ПЕШЕХОДНАЯ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЧЕСКАЯ СЪЕМКА КАК ИНСТРУМЕНТ ОЦЕНКИ РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ ТЕРРИТОРИЙ

Бакланова Ю.В., Кривицкий П.Е., Умаров М.А., Мустафина Е.В., Божко В.В., Монаенко В.Н.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе представлен метод пешеходной гамма-спектрометрической съемки, позволяющий оперативно определять концентрацию радионуклидов в поверхностном слое почвы посредством получения массива спектров. Приведена сравнительная оценка данных о содержании ²⁴¹Am и ¹³⁷Cs в почве, полученных сопряженно в натурных условиях Семипалатинского испытательного полигона (скорость счета гамма-импульсов (*in situ*)), и в результате лабораторного гамма-спектрометрического анализа. Получены коэффициенты перехода, по которым произведено построения карт площадного распределения радионуклидов путем пересчета скоростей счета в площадную активность с учетом плотности почвы.

Ключевые слова: Семипалатинский испытательный полигон (СИП), площадка «Опытное поле», пешеходная гамма-спектрометрическая съемка (ПГСС), гамма-спектр, площадное распределение радионуклидов.

Введение

Знание радиоэкологической обстановки территорий, подвергшихся радиоактивному загрязнению в результате радиационных аварий, инцидентов на предприятиях ядерно-топливного цикла и испытаний ядерного оружия является важным с точки зрения радиационной безопасности. В большинстве случаев радиационный контроль осуществляется посредством лабораторного анализа проб окружающей среды, отобранных на обследуемой территории. Данный подход, как правило, требует длительного времени на проведение всех необходимых анализов и, как следствие, теряется оперативность радиационного контроля, а значит и своевременное реагирование на возможный инцидент. В связи с этим, необходимы методы быстрой оценки радиоактивного загрязнения местности, позволяющие в течение достаточно короткого времени получить достоверную информацию о существовании радиоактивного загрязнения, определить его масштаб, характер и уровни.

Также, при радиоэкологическом обследование обширных территорий или крупных объектов, где площадь объекта обследования может составлять десятки квадратных километров, а участки радиоактивного загрязнения иметь узколокальный характер всего в несколько квадратных метров, необходимо определить точное позиционирование в пространстве и последующее построение детальных карт радиоактивного загрязнения для правильного понимания сложившейся ситуации. В соответствии с чем метод должен иметь возможность координатной привязки с небольшой погрешностью в пространстве.

И последним, но наиболее важным фактором, является возможность достоверной регистрации даже относительно небольшого количества радиоактивного излучения. Из всех видов радиоактивных излучений наибольшей проникающей способностью, а соответственно и опасностью обладает гамма-излучение (гамма-кванты). В настоящее время гамма-спектрометрическое обследование территории проводится двумя путями: отбор проб почвы с последующим лабораторным анализом и гамма-спектрометрическая съемка in situ. В первом случае производят отбор проб по сети обследования, после чего проводят последовательный лабораторный гамма-спектрометрический анализ проб с предварительной пробоподготовкой. Существенным недостатком данного метода в случае проведения масштабного обследования территорий, как обговаривалось ранее, является длительность выполнения лабораторного гамма-спектрометрического анализа (чем больше территория, тем больше количество проб и времени, затрачиваемого на их измерение). При этом, построение карт радиационной обстановки выполняется после гаммаспектрометрических измерений всех проб. Все это сказывается на своевременности действий и принятия мер реагирования на возможный инцидент.

В случае полевой (in situ) гамма-спектрометрии, оценка загрязнения гамма-излучающими радионуклидами проводится быстрей, а соответственно более подходит для оперативного контроля. Гамма-съемку можно подразделить на съемку в фиксированных позициях и съемку в движении. С точки зрения обследования территорий, а не конкретного объекта, проведение измерения в движении более целесообразно. По условиям проведения съемку в движение подразделяют на пешеходную, авто- и аэрогаммасъемку, из них наиболее распространенной является последняя. Однако ее использование довольно дорогостояще, а также не имеет возможности регистрации гамма-излучающих радионуклидов с небольшой энергией выхода гамма-кванта (²⁴¹Am) [1-5]. В этом случае использование пешехода способно повысить чувствительность измерения, хоть и применение подобной методики возможно не везде, так как измерение будет проводиться непосредственно человеком.

В данной работе рассматривается пешеходная гамма-спектрометрическая съемка (ПГСС), объединяющая достоинства перечисленных ранее методов радиоэкологического обследования территорий –

простоту и доступность радиометрической съёмки, точность полевой гамма-спектрометрии и возможность обследования больших территорий (аэрогаммасъемка). Целью настоящего исследования являлась оценка эффективности применения пешеходной гамма-спектрометрической съемки на площадке «Опытное поле» Семипалатинского испытательного полигона.

Материалы и методы исследования

Реализация ПГСС стала возможной благодаря развитию современных технологий. В нашем случае для ПГСС используются гамма-спектрометры со сцинтилляционными детекторами на основе кристалла бромида лантана (LaBr₃(Ce)) на базе многоканальных анализаторов импульсов *DigiBase (ORTEC, CША)* и портативные компьютеры.

ПГСС основан на непрерывном наборе гаммаспектров во время движения пешехода-спектрометриста по заданному профилю с любой заданной плотностью сети обследования на обследуемой территории. Координатная привязка и запись спектрометрических данных осуществляется автоматически с помощью систем GPS-навигации, с сохранением на портативный компьютер. Измерение гамма-излучающих радионуклидов проводилось на высоте 0,5 м от поверхности почвы. Гамма-детекторы были направлены вниз, перпендикулярно поверхности почвы. Координатная привязка и результаты измерений осуществлялась автоматически с помощью систем GPS-навигации с сохранением на ноутбук через каждые 10 с. Затем проводится обработка полученных гаммаспектров, по результатам которой строятся карты радиоактивного загрязнения обследуемой территории (участка). При необходимости, возможно построение карт по каждому интересующему радионуклиду в отдельности.

Для калибровки ПГСС проведен анализ корреляционной зависимости между результатами ПГСС и результатами лабораторного гамма-спектрометрическим анализа проб почвы. Анализ проводился по двум гамма-излучающим радионуклидам: ²⁴¹Am и ¹³⁷Сs. Для определения содержания данных радионуклидов в лабораторных условиях использовались гамма-спектрометры с полупроводниковым детектором на основе чистого германия с высоким энергетическим разрешением (ORTEC, CША) на базе многоканальных анализаторов импульсов digiDART. Измерения проводились в соответствии с методикой выполнения измерений на гамма-спектрометре №5.06.001.98 PK [6].

В качестве критерия оценки чувствительности спектрометров (пределов обнаружения и измерения малых активностей) используют такое понятие, как минимально детектируемая активность (МДА). Поскольку в ходе проведения ПГСС определяется не активность интересующего радионуклида, а его скорость счета в окне регистрации, то вместо значения МДА применялось значение нижнего предела измерений (НПИ). Для этого, перед началом проведения исследования, на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) была выбрана площадка с низким содержанием радионуклидов ²⁴¹Am и ¹³⁷Cs где проводились гамма-спектрометрические измерения фоновых спектров. Время набора каждого спектра, для увеличения статистики, составляло 1800 с. Значение НПИ, с учетом фоновых характеристик гамма-детекторов, определялось по формуле:

$$\mathrm{H\Pi}\mathrm{M}_{t_{f,i}} = \frac{3\sqrt{N_{f,i}}}{t_f},\tag{1}$$

где: НПИ_{*tf,i*} – фоновое значение *i*-го радионуклида нижнего предела измерений, импульс/с; N_{*f,i*} – сумма импульсов в окне регистрации *i*-го радионуклида, в фоновом спектре, импульс/с; t_f – время измерения фонового спектра, с.

Из анализа гамма-спектров установлены фоновые значения нижнего предела измерений $H\Pi U_{t_{f,i}}$ для ²⁴¹Am и ¹³⁷Cs, равные 0,7 импульс/с и 0,15 импульс/с соответственно.

Так как время измерения при проведении ПГСС составляет 10 с, а не 1800 с, необходимо произвести пересчёт НПИ_і для действительного времени измерения:

$$\mathrm{H}\Pi\mathrm{M}_{i} = \mathrm{H}\Pi\mathrm{M}_{t_{f,i}} \cdot \sqrt{1 + \frac{t_{f}}{t_{i}}}, \qquad (2)$$

где: НПИ_{tf,i} – значение нижнего предела измерений *i*-го радионуклида при проведении ПГСС, импульс/с; t_f – время измерения фонового спектра; t_i – время измерения спектра при проведении гамма-спектрометрической съемки для *i*-го радионуклида.

Согласно анализу гамма-спектров, значения НПИ за время измерения, равное 10 с, составляют 5 и 3 импульс/с для ²⁴¹Ат и ¹³⁷Сs соответственно.

С целью калибровки детекторов выбран участок площадки «Опытное поле», где в 50 точках проведены измерения полевыми детекторами. Время набора каждого спектра составило не менее 60 с.

В результате ПГСС получен набор гамма-спектров, характеризующих площадное распределение гамма-излучающих радионуклидов на выбранном участке площадки «Опытное поле». После обработки гамма-спектров получен массив количественных данных (скоростей счета, импульс/с) по основным интересующим линиям – 59,5 кэВ (²⁴¹Am) и 662 кэВ (¹³⁷Cs).

Далее в точках, выбранных для проведения измерений полевыми детекторами, отбирались пробы почвы на глубину 5 см с площадью 200 см² в каждой точке отбора для последующего определения удельной активности ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs в лабораторных условиях гамма-спектрометрическим методом.

При обработке экспериментальных данных приняты коэффициенты перехода от скорости счета полевого детектора к удельной активности для анализируемых радионуклидов, которые составили: для ²⁴¹Am – 86, ¹³⁷Cs – 71 (рисунки 1 и 2).



Рисунок 1. Отношение скорости счета (импульс/с) к удельной активности (Бк/кг) для ²⁴¹Ат



Рисунок 2. Отношение скорости счета (импульс/с) к удельной активности (Бк/кг) для ¹³⁷Сs

Сопоставление результатов радиоактивного загрязнения почвенного покрова по данным полевых и лабораторных гама-спектрометрических измерений показало хорошую корреляцию.

Полученные коэффициенты применялись для расчета площадной активности радионуклидов путем пересчета скоростей счета. Плотность почвы принималась равной 1600 кг/м³.

Площадная активность интересующих радионуклидов в верхнем слое почвы определялась по формуле:

$$\mathbf{A}_{s,i} = \frac{\mathbf{A}_{i,0-5} \cdot \rho \cdot V}{s},\tag{3}$$

где: $A_{s,i}$ – площадная активность *i*-го радионуклида, Бк/м²; $A_{i,0-5}$ – удельная активность *i*-го радионуклида в верхнем слое почвенного покрова, Бк/кг; ρ – плотность почвы, кг/м³; V – объем пробы почвы, м³; s – площадь отбора проб верхнего слоя почвенного покрова, м².

Для апробации ПГСС на территории площадки «Опытное поле» были проведены совместные работы по отбору проб почвы и ПГСС. На обследуемую территорию накладывалась сеть обследования (рисунок 3).

Для отбора проб почвы была принята сеть обследования 0,5×0,5 км (рисунок 3, а). Для ПГСС 10 м между профилями (рисунок 3, б).





Рисунок 3. Сеть обследования выбранной территории

СИП: для проб почвы (a), для ПГСС (б) (представлен только верхний участок)

Результаты и их обсуждение

В результате проведенной пешеходной гаммаспектрометрической съемки получен массив гаммаспектров, характеризующих площадное распределение гамма-излучающих радионуклидов на обследуемой территории. Диапазон скоростей счета составил от 5 до 1192,6 импульс/с для ²⁴¹Ат и от 3 до 2757 импульс/с – для ¹³⁷Сs. Согласно выполненным лабораторным анализам, максимальные значения удельной активности $^{241}\rm{Am}$ и $^{137}\rm{Cs}$ составили 170000 Бк/кг и 210000 Бк/кг, минимальные значения – 52 Бк/кг и 22 Бк/кг соответственно.

Характер радиоактивного загрязнения почвенного покрова обследуемой территории представлен в виде карт распределения техногенных радионуклидов ²⁴¹Ат и ¹³⁷Cs на рисунках 4 и 5.







Рисунок 5. Поверхностное распределение ¹³⁷Cs: ПГСС (а); отбор проб почвы (б); аэрогаммасъемка (в)

На картах распределения ²⁴¹Ат четко прослеживается разница в результатах обследования, уровень детализации радиоактивного загрязнения при ПГСС значительно информативней. Единственным минусом ПГСС перед отбором проб является более низкая чувствительность, что как раз прослеживается при регистрации ралионуклидов с относительно небольшой энергией испускания гамма-квантов, таких как ²⁴¹Ат у которого данная энергия составляет 59,5 кэВ. Это напрямую влияет на предел обнаружения и вследствие этого не подходит для обследования «фоновых» территорий, но этот факт никак не противоречит целям данной съемки, так как основной ее целью является как раз выявление аномалий, а в этом случае ПГСС выходит гораздо продуктивней и соответственно предпочтительней по итогу.

Схожая ситуация обстоит и с ¹³⁷Cs, с одним лишь отличием, что в данном случае чувствительность ПГСС будет выше, вследствие большей энергии испускания гамма-квантов, которая составляет 662 кэВ. Также для примера представлена карта распределения ¹³⁷Cs, полученная по результатам аэрогаммасъемки (рисунок 5, в). Как можно наблюдать, детализация в данном случае еще ниже, чем при отборе проб, но в отличии от него отсутствует вероятность пропуска участка радиоактивного загрязнения. Из всего вышеизложенного наглядно видно, что ПГСС значительно превосходит своих оппонентов по возможности радиационного обследования, при том, что данная съемка требует гораздо меньше трудозатрат и времени.

Резюмируя вышеизложенное можно сказать, что ПГСС позволяет определить контур и уровни площадного распределения гамма-излучающих радионуклидов с высокой степенью детализации и точности. А используя полученные коэффициенты перехода можно провести расчёт площадной активности и построить карты площадного распределения ²⁴¹Am и ¹³⁷Cs.

Заключение

При рассмотрении пешеходной гамма-спектрометрической съемки в качестве инструмента оценки радиоактивного загрязнения территорий приняты коэффициенты перехода от скорости счета полевого детектора к удельной активности для анализируемых радионуклидов, которые составили: для ²⁴¹Am – 86, ¹³⁷Cs – 71. Применяя полученные коэффициенты перехода от скорости счета полевого детектора к удельной активности и, далее, к площадной активности, были рассчитаны площадные активности и построены карты распределения ²⁴¹Am и ¹³⁷Cs территории испытательной площадки СИП.

Проведена сравнительная оценка различных методов оценки радиоактивного загрязнения территорий, установлено, что уровень детализации радиоактивного загрязнения при ПГСС значительно информативней, чем при отборе проб и аэрогаммасъемке.

Метод ПГСС позволяет оперативно определять концентрацию гамма-излучающих радионуклидов природного и техногенного происхождения в почвенном покрове, определить контур и уровни площадного распределения гамма-излучающих радионуклидов с высокой степенью детализации и точности.

Работа выполнена в рамках темы «Разработка новых методов оценки радиационного состояния объектов ЯТЦ» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Аэрогамма-спектрометрический метод поисков рудных месторождений: Метод. руководство / [В.П. Воробьев, А.В. Ефимов, М.И. Альтшулер и др.]. Л.: «Недра». Ленингр. отделение, 1977. 216 с.
- Дровников В.В., Егоров М.В., Егоров Н.Ю., Живун В.М., Кадушкин А.В., Коваленко В.В. Разработка аэрогаммаспектрометрических технологий поиска и идентификации техногенных радиоактивных источников // «АНРИ». – 2005. – №3 (42). – с. 10–14.
- 3. Израэль Ю.А., Вакуловский С.М., Ветров В.А. и др. Чернобыль: радиоактивное загрязнение природных сред. М.: Гидрометеоиздат, 1990. 296 с.
- Потапов В.Н. Разработка радиометрических систем и методов полевых и дистанционных измерений радиоактивного загрязнения: автореф. дис. ... д-р. физ.-мат. наук: 01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики. – Москва, 2010. – 48 с.
- 5. Пруткин М.И., Шашкин В.Л. Справочник по радиометрической разведке и радиометрическому анализу. -2-е изд., перераб. и доп.: М.: Энергоатомиздат, 1984, с.57–61.
- 6. Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика измерений на гамма-спектрометрах с использованием программного обеспечения «SpectraLine» Введ. 2004-08-26. Рег. № КZ.07.00.00303-2004 М.: РГП «Казахский институт метрологии».

АУМАҚТЫҢ РАДИОАКТИВТІ ЛАСТАНУЫН БАҒАЛАУ ҚҰРАЛЫ РЕТІНДЕ ЖАЯУ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИЯЛЫҚ ТҮСІРУ

Ю.В. Бакланова, П.Е. Кривицкий, М.А. Умаров, Е.В. Мустафина, В.В. Божко, В.Н. Монаенко

КР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада жаяу гамма-спектрометриялық түсіру әдісі берілген, ол спектрлер массивін алу арқылы топырақтың беткі қабатындағы радионуклидтердің шоғырлануын жедел анықтауға мүмкіндік береді. Семей сынақ полигонының табиғи жағдайымен бірге алынған (гамма-импульсті есептеу жылдамдығы (*in situ*)) және зертханалық гамма-спектрометриялық талдау нәтижесіндегі топырақтағы ²⁴¹Am және ¹³⁷Cs құрамы туралы мәліметтерге салыстырмалы бағалау келтірілген. Радионуклидтердің алаңдық таралу карталары топырақтың тығыздығын есепке отырып алаңдық белсенділігінің жылдамдығын есептеу арқылы құрылды соған сәйкес өту коэффициенттері алынды.

Кілт сөздер: Семей сынақ полигоны (ССП), «Тәжірибе даласы» алаңы, жаяу гамма-спектрометриялық түсіру (ЖГСТ), гамма-спектр, радионуклидтердің алаңдық таралуы.

PEDESTRIAN GAMMA-SPECTROMETRIC SURVEY AS A TOOL FOR ASSESSING RADIOACTIVE CONTAMINATION OF TERRITORIES

Yu.V. Baklanova, P.Ye. Krivitsky, M.A. Umarov, Ye.V. Mustafina, V.V. Bozhko, V.N. Monayenko

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper provides a pedestrian gamma-spectrometric survey technique that allows prompt determination of the concentration of radionuclides in topsoil by accumulating an array of spectra. A comparative assessment of data on the content of ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in soil is given, simultaneously obtained in full-scale conditions of Semipalatinsk Test Site (gamma-count rate (*in situ*)), and as a result of the in vitro gamma-spectrometric analysis. Transfer factors were derived based on which maps of the areal distribution of radionuclides were plotted by converting count rates to the areal activity given soil density.

Keywords: Semipalatinsk Test Site (STS), "Experimental Field" site, pedestrian gamma-spectrometric survey (PGSS), gamma-spectrum, areal distribution of radionuclides.

УДК 581.5: 504.53:539.16

ОЦЕНКА ВЛИЯНИЯ ИНДИВИДУАЛЬНЫХ БИОЛОГИЧЕСКИХ ОСОБЕННОСТЕЙ РАСТЕНИЙ НА СОДЕРЖАНИЕ ОТДЕЛЬНЫХ ХИМИЧЕСКИХ ЭЛЕМЕНТОВ И РАДИОНУКЛИДОВ

Ларионова Н.В., Кожаханов Т.Е., Иванова А.Р.

Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В работе рассмотрены количественные величины содержания отдельных химических элементов и радионуклидов в надземной части подсолнечника в условиях радиоактивного загрязнения Семипалатинского испытательного полигона (СИП). Установлено, что содержание исследуемых химических элементов и радионуклидов в почве, при одинаковых почвенно-климатических условиях, изменяется менее значительно (коэффициент вариации в среднем не превышает 20%), чем в растениях (коэффициент вариации составляет 20–40%). Самый широкий диапазон значений удельной активности в надземной части подсолнечника характерен для чуждого растительному организму радиоактивного элемента ²⁴¹Ат – коэффициент вариации более 40%.

Ключевые слова: Семипалатинский испытательный полигон (СИП), химические элементы, искусственные радионуклиды, цезий (¹³⁷Cs), америций (²⁴¹Am), подсолнечник.

Введение

Потребление сельскохозяйственной продукции с повышенным содержанием радионуклидов и химических элементов является одним из основных источников облучения и токсической опасности населения, проживающего или ведущего хозяйственную деятельность на территории с радиоактивным и химическим загрязнением. В связи с чем, качество сельскохозяйственной продукции, которая может быть получена на территориях подвергшихся радиоактивному или химическому загрязнению, является одной из важных и актуальных проблем на сегодняшний день.

Содержание радионуклидов в растениях зависит от комплекса факторов, среди которых выделяют следующие основные группы: физико-химические свойства радионуклидов и химических элементов; агрохимическая характеристика почв; биологические особенности растений; агротехника возделывания культур. На сегодняшний день влияние выше перечисленных факторов на особенности накопления радионуклидов и отдельных химических элементов в растениях в мире хорошо изучено [1-5]. В зависимости от биологических особенностей растений для сельскохозяйственных культур установлены межвидовые (разные виды) и внутривидовые (разные сорта) различия в накоплении радионуклидов и химических элементов, достигающие 3-10 раз и 1,5-3 раза соответственно [3, 6-8].

Отдельными исследователями отмечаются определенные корреляционные связи между содержанием некоторых химических элементов и количественными признаками (высота розетки, длина черешка, масса растений, масса листьев) листовых овощей, а также между накоплением радионуклидов и морфобиологическими признаками у овощных культур (томат, лук, капуста и морковь) [9, 10]. Несмотря на это, анализ мировых данных показал, что достоверной информации, отражающей вариативность содержания радионуклидов и химических элементов для отдельных особей внутри вида (сорта), а также влияние индивидуальных биологических особенностей растений на элементный и радионуклидный состав растений, просто нет.

Впервые работы по изучению особенностей накопления радионуклидов сельскохозяйственными культурами и их распределением по отдельным органам растений на территории Семипалатинского испытательного полигона (СИП) были начаты в 2010 г. на пл. «Опытное поле», результатом которых стали экспериментальные данные коэффициентов накопления ²⁴¹Am, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr и ²³⁹⁺²⁴⁰Pu для основных видов растительной продукции [11-13]. Однако в 2014 г. было установлено, что, несмотря на практически одинаковые условия эксперимента (один тип почвы, климатические условия), разница в накоплении радионуклидов между отдельными растениями одного вида может достигать одного порядка. Данное обстоятельство могло указывать на наличие особого влияния индивидуальных биологических особенностей растений на миграцию радионуклидов в системе «почва – растение».

Настоящая работа посвящена результатам исследования по изучению влияния индивидуальных биологических особенностей растений на содержание отдельных радионуклидов и химических элементов в подсолнечнике в специально созданных идентичных условиях на территории СИП.

Материалы и методы исследования

Постановка экспериментальных работ

Местом проведения натурного эксперимента с растениями стала площадка «Опытное поле» на территории СИП. Климатические условия, рельеф и одинаковый уровень радионуклидного загрязнения выбранного участка обеспечивали соблюдение важного условия эксперимента – идентичность условий вегетационного опыта для всех экспериментальных растений (рисунок 1).



Рисунок 1. Территория СИП: техническая площадка «Опытное поле» (a); расположение опытного участка на площадке П-2 (б)

Объекты исследования

Объектом исследования выбран подсолнечник (сорт «Заря»), как вид сельскохозяйственных растений, являющийся одной из основных культур, производимых на территории Республики Казахстан. Посадка исследуемых растений на опытном участке производилась семенами в июне.

Основные этапы эксперимента с сельскохозяйственными растениями

г)

Посадка исследуемых растений на опытном участке производилась семенами (норма высева 3 семени/емкость) в цилиндрические емкости с подготовленным почвенным грунтом. Учитывая, что накопление искусственных радионуклидов в растениях очень низкое, то одним из условий эксперимента стало получение количественных величин содержания радионуклидов в растениях. Поэтому, в качестве почвенного грунта послужила почва, с достаточно высоким уровнем радионуклидного загрязнения, отобранная с разных площадок СИП на слой 0–10 см (почвы с площадок «П-5», «П-1», «П-3», «4а» и чистый песок). Подготовка почвенного грунта включала следующие этапы: просеивание через сито с размерами ячеек 5×5 мм, перемешивание, расфасовку в пакеты по $27,0\pm0,5$ кг и дальнейшую закладку в посадочные емкости (рисунок 2).

e)



Рисунок 2. Этапы работ на экспериментальных участках: отбор почвы на разных площадках СИП (a); просев почвы (б); гомогенизация почвенного грунта путем многократного ручного смешивания (в); расфасовка готового почвенного грунта для каждой емкости (г); схема посадки подсолнечника (д); ростки подсолнечника (е)

д)

Для лучшего роста и развития растений в почвенный грунт каждой емкости были внесены минеральные удобрения (азотные, фосфорные и калийные) (таблица 1).

Таблица 1. Минеральные удобрения, внесенные в почвенный грунт

	Внесение минеральных удобрений, г/емкость			
Вид	Азотные (мочевина) CO(NH ₂) ₂	Фосфорные (суперфосфат) (CaH ₂ PO ₄) ₂ · H ₂ O + 2CaSO ₄ · 2H ₂ O	Калийные сернокислый калий) К ₂ SO ₄	
Подсолнечник	10	15	10	

С момента посадки семян в почвенный грунт проводился постоянный уход за растениями: полив, окучивание, удаление слабых ростков и подвязка стебля. В течение всего эксперимента проводился учет некоторых параметров: водный режим (объем поливной воды), фазы развития растений (всходы, бутонизация, цветение, созревание), биометрические показатели растений (прирост стебля в длину и в диаметре, размеры и количество листьев) и оценка общего состояния растений (болезни, вредители).

В связи с отсутствием источников пресной воды и наличия грунтовых вод с высокой соленостью на исследуемой территории полив экспериментальных растений осуществлялся привозной водой, не загрязненной радионуклидами. Полив производился 1 раз в 3 дня или по необходимости (осадки, высокая температура воздуха). В среднем объем поливной воды за один полив составлял 2 л/емкость.

Отбор проб сельскохозяйственных растений и почвы

Окончательный сбор растений (надземная часть) проводился в сентябре, когда основная часть растений достигла фазы плодоношения. Растительные пробы помещались в полиэтиленовые пакеты и снабжались паспортом. Почвенные пробы были отобраны с 5 емкостей на корнеобитаемую глубину (в среднем 0–15 см). Отбор производился специальным инструментом (металлический совок) с высотой отбираемой части пробоотборника – 5 см, шириной – 5 см и длиной – 5 см. После отбора, пробы почвы с каждой емкости перемешивались и усреднялись методом квартования до массы 0,3 кг.

Радионуклидный анализ

Анализы по измерению удельной активности радионуклидов в пробах почвы и растений проводились в соответствии стандартизованными методическими указаниями на поверенной лабораторной аппаратуре [14]. Измерение удельной активности радионуклидов в пробах почв и растений проводилось методами γ-спектрометрии (¹³⁷Cs и ²⁴¹Am). Концентрация ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am в растениях определялась в обугленных пробах (обугливание при 350 °C), с последующим пересчетом на сухое вещество. Определение содержания химических элементов проводился методами масс-спектрометрии (ИСП-МС) и атомно-эмиссионной спектрометрии (ИСП-АЭС) с использованием квадрупольного масс-спектрометра *Elan 9000* фирмы *Perkin Elmer SCIEX*, а также атомно-эмиссионного спектрометра с индуктивно-связанной плазмой *iCAP 6300 Duo* фирмы *Thermo Scientific*.

Результаты и их обсуждение

На момент окончательного отбора растений были получены некоторые биометрические показатели: прирост стебля в высоту, диаметр стебля, масса надземной части (рисунок 3).



Рисунок 3. Биометрические показатели экспериментальных растений

Выявлено, что данные по сырой массе растений (39,9%) отличаются большей вариативностью, чем данные по диаметру стебля (23,6%) и приросту стебля (14,4%). Масса растений, размеры стебля в высоту и его диаметр зависят от фазы вегетации, поскольку в двух случаях растения на момент отбора находившиеся в фазе цветения, показали наименьшие величины. Средние величины биометрических показателей исследуемых растений представлены в таблице 2.

Для исследуемых растений были получены количественные величины содержания отдельных химических элементов и радионуклидов в надземной части (таблицы 3 и 4).

Параметры	AM*	Минимум	Максимум	Kv, %**
Длина стебля, см	136,7 ± 3,9	99	179	14,4
Диаметр стебля (3 см от поверхности грунта), мм	26,0 ± 1,2	14	41	23,6
Сырая масса надземной части (листья+стебель), г	766,4 ± 65,9	240	1450	39,9

Таблица 2. Средние показатели роста и развития подсолнечника

Примечание: * — среднее арифметическое значение; ** — коэффициент вариации.

Таблица 3. Содержание радионуклидов и химических элементов в исследуемой почве (n=5)

Элемент	АМ*, мг/кг	Мин–макс, мг/кг	Kv**, %	Концентрация***, мг/кг	ПДК****
Fe	23111,7 ± 1335,5	20370-29130	14,2	38000*****	1000
Mn	691,7 ± 91,9	430–960	32,5	850	1500
Sr	80,7 ± 5,6	71–107	17,0	300	-
Zn	$43,2 \pm 3,0$	34–53	17,3	50	300
Cu	19,8 ± 2,1	16–30	25,8	20	100
Co	$8,5 \pm 0,62$	7–11	17,9	10	100
AI	22890,0 ± 1258,8	19780-27240	13,5	_	
V	$59,8 \pm 4,2$	51–78	17,3	100	150
Pb	52,7 ± 4,7	34–63	21,9	10	32
Ni	28,3 ± 3,1	20–42	27,1	40	100
Cr	28,3 ± 1,5	24–33	13,0	200	100
Cs	1,2 ± 0,052	1,1–1,4	10,5	3,7	
U	1,1 ± 0,062	1–1,2	14,11	2	
Cd	$0,2 \pm 0,02$	0,12-0,25	28,6	0,5	3,0
Радионуклид	АМ*, Бк/кг	Мин–макс, Бк/кг	Kv**, %	нормы	
¹³⁷ Cs	68500 ± 4800	51000-87000	17,3	-	_
²⁴¹ Am	36800 ± 2400	32000-48000	16,2	-	_

Примечание: * – среднее арифметическое значение; ** – коэффициент вариации; *** – средняя концентрация по Виноградову, 1957; **** – ПДК по Kloke A.,1980; ***** – кларк по Алексеенко, 1990.

Таблица 4.	Содержание	радионуклидов и	и химических элементов	в исследуемых растени	(n=20)
,	1	1 2		- 1	

Элемент	АМ, мг/кг	Мин–макс, мг/кг	Kv, %	Концентрация*, мг/кг	Биофильность	
Fe	312,0 ± 29,1	150–560	41,7	2000	биогенные элементы	
Sr	158,1 ± 13,2	75–260	37,3	35		
Mn	67,1 ± 6,7	22–130	45,0	205		
Zn	10,5 ± 1,3	2,3–22	56,9	30		
Cu	6,9 ± 0,69	1,3–12	44,7	8		
Co	0,16 ± 0,012	0,081–0,24	32,6	0,5		
AI	56,5 ± 8,1	16–150	19,57	_		
Cr	1,1 ± 0,045	0,83–1,6	18,0	1,8	050050500000	
Ni	0,68 ± 0,047	0,36–0,98	30,0	1,0		
Cd	0,24 ± 0,025	0,07–0,048	47,7	<u>0,035</u>	положительное положительное влияние на развитие растений	
Pb	0,19 ± 0,016	0,07–0,26	37,2	1,25		
V	0,16 ± 0,022	0,043–0,36	62,6	1,5		
Cs	0,021 ± 0,0031	0,0042-0,048	66,1	0,12		
U	0,033 ± 0,0014	0,022–0,052	64,0	0,02		
Радионуклид	АМ*, Бк/кг	Мин–макс, Бк/кг	Kv**, %	Нормы **	Биофильность	
¹³⁷ Cs	10,9 ± 0,8	4,7 – 18	36,4	49	аналог К	
²⁴¹ Am	3,5 ± 0,46	1,1 – 10	62,4	6,3***	чуждый элемент	

Примечание: * – средняя концентрация по Добровольскому, 2003; ** – Гигиенические нормативы «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности» РК №155 от 27.02.2015; *** – оценочные нормы для ²⁴¹Ат. Валовое содержание элементов в почве показало, что максимальные концентрации отмечаются для Fe, Al, Mn, а минимальные – U, Cs, Cd. Практически для всех элементов превышения средней концентрации элементов в земной коре не установлено. Исключение составили Fe и Pb концентрации, которых в исследуемой почве превышают ПДК. В среднем коэффициент вариации содержания, как химических элементов, так и радионуклидов в исследуемой почве составляет 20 %.

Содержание элементов в растениях показало, что максимальные концентрации отмечаются для Fe, Sr, а минимальные - Al и Cs. Сравнение со средней концентрацией элементов в фитомассе растений показало, что практически для всех элементов превышения не установлено. Исключение составили концентрации Sr и Cd в исследуемых растениях, которые превысили средние величины в 8 раз и 1,5 раза соответственно. Коэффициент вариации содержания химических элементов в растениях, относящихся как группе биогенных элементов, так и к группе элементов, оказывающих определенное влияние на развитие растений, в среднем составляет 43%. Разница величин удельной активности ¹³⁷Cs в растениях составляет 36%, а ²⁴¹Am – более 62%. Значимые различия в коэффициентах вариации для радионуклидов связаны с тем, что ¹³⁷Cs является аналогом биогенного элемента K, а ²⁴¹Am нее имеет аналогов и является чуждым элементом для растительного организма.



Рисунок 4. Содержание радионуклидов в исследуемых растениях, находящихся на разных стадиях вегетации

В случае использования почвы с абсолютно идентичными физико-химическими характеристиками, радионуклидным и элементным составом, когда коэффициент вариации содержания радионуклидов и химических элементов в почве равен 0% или близок к нему, вычет полученной средней величины вариации данных для почвы в 20% (таблица 3) из вариации данных для растений (таблица 4) показывает истинный коэффициент вариации данных для исследуемых растений. Так для всех исследованных химических элементов и радионуклида ¹³⁷Сs коэффициент вариации содержания их в растениях в среднем составляет ~20%, а для радионуклида ²⁴¹Ат ~40%.

Как показали полученные данные, содержание радионуклидов в растениях на разных стадиях развития (фазы вегетации) не сильно отличается и имеет довольно узкий диапазон значений: для ¹³⁷Cs от 5 до 20 Бк/кг, а для ²⁴¹Am от 1 до 5 Бк/кг (рисунок 4).

Оценка влияния некоторых биометрических показателей исследуемых растений на содержание радионуклидов показала, что какой-либо зависимости содержания радионуклида ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am от высоты стебля, диаметра стебля и массы растений не установлено (рисунок 5).

Заключение

Получены биометрические показатели растений: прирост стебля в высоту, диаметр стебля, масса надземной части. Выявлено, что данные по сырой массе растений (39,9%) отличаются большей вариативностью, чем данные по диаметру стебля (23,6%) и приросту стебля (14,4%). Масса растений, размеры стебля в высоту и его диаметр зависят от фазы вегетации, поскольку в двух случаях растения на момент отбора находившиеся в фазе цветения, показали наименьшие величины.

В результате проведенных исследований установлено, что содержание радионуклидов в растениях на разных стадиях развития не сильно отличается и имеет довольно узкий диапазон значений: для ¹³⁷Cs от 5 до 20 Бк/кг, а для ²⁴¹Am от 1 до 5 Бк/кг. Зависимости содержания радионуклида ¹³⁷Cs и ²⁴¹Am от высоты стебля, диаметра стебля, массы растений не выявлены.

В целом, установлено, что содержание исследуемых химических элементов и радионуклидов в почве, при одинаковых почвенно-климатических условиях, изменяется незначительно (коэффициент вариации в среднем не превышает 20%), а в растениях гораздо сильнее (коэффициент вариации составляет 20–40%). Самый широкий диапазон значений удельной активности в надземной части подсолнечника характерен для чуждого растительному организму радиоактивного элемента ²⁴¹Аm, коэффициент вариации более 40%.



Рисунок 5. Содержание радионуклидов в исследуемых растениях в зависимости от некоторых их биометрических показателей

Таким образом, установлено, что разница, обусловленная индивидуальными биологическими особенностями растений, в содержание отдельных химических элементов и радионуклидов, прежде всего ¹³⁷Cs, в растениях, выращенных в идентичных условиях, составляет ~20%. Для корректного использования данных в расчетных методах оценки качества растительной продукции влияние индивидуальных особенностей растений на содержание химических элементов и радионуклидов в растениях исключать нельзя. Работа выполнена в рамках темы «Разработка принципов биологического мониторинга зоны влияния предприятий ядерного топливного цикла» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Ковалевский А.Л. Основные закономерности формирования химического состава растений / А.Л. Ковалевский // Биогеохимия растений. Улан-Удэ: Бурятское книжное изд-во, 1969. С. 6–28.
- Джанчаров Т.М. Накопление тяжелых металлов овощными культурами в зависимости от концентрации в субстрате и обеспеченности растений макроэлементами / Т.М. Джанчаров // Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата биологических наук. – Москва, 1993. – 26 с.
- 3. Сельскохозяйственная радиоэкология / под ред. академика ВАСХНИЛ Р.М. Алексахина и академика ВАСХНИЛ Н.А. Корнеева. М.: Экология, 1992. С. 56–70.
- 4. Кузнецов В.К. Накопление искусственных радионуклидов овощными культурами при орошении / В.К. Кузнецов // Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата биологических наук. – Обнинск: Малоярославецкая городская типография управления издательств, полиграфии и книжной торговли Калужского облисполкома, 1986. – 18 с.
- 5. Молчанов И.В., Куликов Н.В. Радиоактивные изотопы в системе почва растение. М., Атомиздат, 1972, 86 с.
- 6. Горина Л.И. Накопление радиоцезия сельскохозяйственными культурами в зависимости от свойств почв и биологических особенностей растений / Автореферат на соискание ученой степени кандидата биологических наук. Москва: Типография Московской с.-х. академии им. Тимирязева, 1976. 17 с.
- 7. Кудряшов В.И. Аккумуляция тяжелых металлов различными сортами однолетнего люпина в условиях ботанического сада / Кудряшов В.И., Гудошникова Т.Н. // Бюллетень Ботанического сада Саратовского государственного университета, 2012, № 10, с. 52–56.
- 8. Позняк С.С. Накопление тяжелых металлов в растительности овощных агрофитоценозов в условиях техногенного загрязнения почвенного покрова // Веснік Мазырскага дзяржаунага педагагічнага універсітэта імя І.П. Шамякіна, 2010, № 3, с. 3–8.

- Краснолобова О.В. Оценка исходного материала овощных культур для селекции на стабильный уровень накопления химических элементов / Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата сельскохозяйственных наук. – Москва: Типография ООО «Телер», 2005. – 27 с.
- Крук А.В. Эколого-генетическая оценка накопления радионуклидов сортами овощных культур // Автореферат диссертации на соискание ученой степени кандидата биологических наук. – Гомель – 2004. – 21 с.
- 11. Kozhakhanov.T.E., Lukashenko S.N., Larionova N.V. Accumulation of artificial radionuclides in agricultural plants in the area used for surface nuclear tests // Journal of Environmental Radioactivity, Volume 137, November 2014, PP. 217–226.
- 12. Особенности накопления техногенных радионуклидов сельскохозяйственными культурами в районе проведения наземных ядерных испытаний // Актуальные вопросы радиоэкологии Казахстана [Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2010 г.] / под рук. С.Н. Лукашенко. Вып. 3. Т. 2. Павлодар: Дом печати, 2011. С. 59–84.
- 13. К вопросу о вариативности поступления искусственных радионуклидов в растениеводческую продукцию при её производстве на пл. «Опытное поле» территории СИП [Сборник трудов Национального ядерного центра Республики Казахстан за 2011–2012 гг.] / под рук. С.Н. Лукашенко. – Вып. 4. – Т. 2. – Павлодар: Дом печати, 2013 – С. 113–135.
- 14. Активность радионуклидов в объемных образцах. Методика выполнения измерений на гамма-спектрометре МИ 2143-91: МИ 5.06.001.98 РК. Алматы, 1998. 18 с.

ӨСІМДІКТЕРДІҢ ЖЕКЕ БИОЛОГИЯЛЫҚ ЕРЕКШЕЛІКТЕРІНІҢ ЖЕКЕЛЕГЕН ХИМИЯЛЫҚ Элементтер мен радионуклидтердің құрамына әсерін бағалау

Н.В. Ларионова, Т.Е. Кожаханов, А.Р. Иванова

ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Жұмыста Семей сынақ полигонының (ССП) радиоактивті ластану жағдайында күнбағыстың жербеткі бөлігіндегі жекелеген химиялық элементтер мен радионуклидтер құрамының сандық мөлшерлері қарастырылған. Топырақтағы зерттеліп жатқан химиялық элементтер мен радионуклидтердің құрамының біркелкі топырақтық-климаттық жағдайларда өсімдіктерге (құбылу коэффициенті 20–40% құрайды) қарағанда аса аз өзгеретіні (құбылу коэффициенті орташа алғанда 20% аспайды) анықталды. Күнбағыстың жербеткі бөлігіндегі тиесілі белсенділік мәндерінің ең кең диапазоны өсімдік ағзасына бөтен радиоактивті элемент ²⁴¹Ат үшін тән – құбылу коэффициенті 40% артық емес.

Кілт сөздер: Семей сынақ полигоны (ССП), химиялық элементтер, жасанды радионуклидтер, цезий (¹³⁷Cs), америций (²⁴¹Am), күнбағыс.

ASSESSMENT OF THE IMPACT OF INDIVIDUAL BIOLOGICAL FEATURES OF PLANTS ON THE CONTENT OF CERTAIN CHEMICAL ELEMENTS AND RADIONUCLIDES

N.V. Larionova, T.Ye. Kozhakhanov, A.R. Ivanova

Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The paper addresses quantitative values of the content of certain chemical elements and radionuclides in the aboveground part of sunflower in conditions of radioactive contamination at Semipalatinsk Test Site (STS). It was found that the content of chemical elements and radionuclides of interest in soil, in the same soil and climatic conditions, varies less significantly (variation factor on average does not exceed 20%) that the one in plants (variation factor is 20-40%). The widest range of activity concentration values in the aboveground part of sunflower is characteristic of 241 Am, the radioactive element, which is alien to the plant body – the variation factor is more than 40%.

Keywords: Semipalatinsk Test Site (STS), chemical elements, artificial radionuclides, cesium (¹³⁷Cs), americium (²⁴¹Am), sunflower.

ОЦЕНКА СОСТОЯНИЯ ОЯТ РЕАКТОРА БН-350 В РЕЖИМЕ ДОЛГОВРЕМЕННОГО ХРАНЕНИЯ

¹⁾ Кривицкий П.Е., ¹⁾ Мустафина Е.В., ²⁾ Прозорова И.В., ²⁾ Прозоров А.А., ¹⁾ Чернов А.А.

¹⁾ Филиал «Институт радиационной безопасности и экологии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан ²⁾ Филиал «Институт атомной энергии» РГП НЯЦ РК, Курчатов, Казахстан

В статье представлены результаты γ-спектрометрического обследования контейнеров, содержащих ОЯТ реактора БН-350. На основании теоретической оценки приведены результаты расчета дозовых полей нейтронного и фотонного излучения, создаваемого одиночным контейнером с отработавшим ядерным топливом, с различными вариантами разрушения стенок ТВС и разной степенью осыпания топлива. Определены первоначальные значения, необходимые для проведения мониторинга состояния ОЯТ, а также время экспозиции и сеть обследования. При сопоставлении результатов теоретической оценки с экспериментальными данными, установлено, что оптимальными позициями для последующего мониторинга состояния ОЯТ в режиме долговременного хранения являются точки измерения на высоте 2 м от днища контейнера. Данные позиции являются максимально репрезентативными и в случае осыпания топлива, данный процесс отразится при мониторинговых измерениях. *Ключевые слова:* БН-350, отработавшее ядерное топливо (ОЯТ), долговременное хранение, гамма-спектрометр.

Введение

Правовой основой для создания площадки долговременного контейнерного хранения отработавшего ядерного топлива (ДКХОЯТ) реакторной установки БН-350 послужило Постановление Правительства Республики Казахстан от 22 апреля 1999 года № 456 «О выводе из эксплуатации реактора БН-350 в городе Актау Мангистауской области», согласно которому РУ БН-350 должна быть приведена в состояние безопасного хранения.

Для долговременного хранения отработавшее ядерное топливо (ОЯТ) было размещено в металлобетонные контейнеры двухцелевого назначения, выступающие и в качестве основного транспортного упаковочного комплекта (ТУК), и в качестве упаковочного комплекта для хранения (УКХ). Метод сухого хранения, выбранный для хранения ОЯТ БН-350, является относительно новым [1]. В отличие от хранения ОЯТ в бассейнах выдержки история сухого хранения в мире насчитывает чуть более 30 лет (первая лицензия на эксплуатацию сухого контейнерного хранилища ОЯТ на площадке АЭС Сарри в штате Вирджиния была выдана в 1986 году). Для конструкторских бюро РФ, разработавших проект долговременного сухого хранения ОЯТ БН-350, опыт такого рода проектирования получен впервые. Таким образом, несмотря на теоретические расчеты, обосновывающие надежность и безопасность сухого долговременного хранения (в течение 50-100 лет), экспериментального подтверждения этому на данный момент не имеется.

ОЯТ – это неизбежный побочный продукт производства атомной энергии, в состав которого входит уран, плутоний и осколочные продукты деления, радиоактивность которых составляет до 99% активности всех материалов. Присутствие делящихся нуклидов урана и плутония требует исключения риска самопроизвольной цепной ядерной реакции при обращении с ОЯТ, что фундаментально отличает отработавшее топливо от радиоактивных отходов, образующихся в ядерно-оружейной и гражданских сферах применения энергии атома. В то время как, система радиационного контроля топлива, размещенного на площадке ДКХОЯТ, предназначена для получения и обработки информации, характеризующей общее радиационное состояние объектов ДКХОЯТ и физическую целостность внешних корпусов. Данная система не имеет возможности установления характера процессов, происходящих внутри контейнеров и определения структурной целостности конструкционных материалов ОЯТ и внутренних элементов контейнеров.

В процессе хранения материалы контейнеров с ОЯТ и материалы самих тепловыделяющих сборок (ТВС) могут деградировать. Их механические свойства будут ухудшаться из-за облучения нейтронами и гамма-квантами, высоких тепловых нагрузок, коррозии и пр. Скорость деградации может оказаться выше расчетной из-за неверного выбора материалов или нарушений при упаковке ОЯТ в контейнеры. Это может привести к тому, что часть защитных барьеров контейнерного хранилища окажется разрушена ещё до окончания срока хранения ОЯТ. При разрушении возможно возникновение ситуаций с выходом продуктов деления (ПД) в окружающую среду с последующим облучением персонала и населения; ситуаций с изменением конфигурации ОЯТ, что может привести к его расплавлению и/или уменьшению уровня ядерной безопасности и т.д.

В соответствии с вышеизложенным представляется актуальным уже сейчас, на начальном этапе эксплуатации ДКХОЯТ, разработать методику комплексной оценки состояния ОЯТ и установить порядок проведения оценки. Это позволит заблаговременно выявлять изменения состояния контейнеров и предпринимать меры по предотвращению или смягчению последствий этих изменений на персонал, население и окружающую среду.

Материалы и методы исследования

Для установления характера процессов, происходящих внутри контейнеров проведены γ-спектрометрические измерения поверхностей 60 контейнеров при помощи специально разработанной методики у-спектрометрического измерения.

Основой комплекса является сцинтилляционный гамма-спектрометр(ORTEC) на основе бромида лантана и портативный компьютер. Размер кристалла сцинтилляционного гамма-спектрометра – 1,5 дюйма (разрешение на 662 кэВ – 2,8–4 кэВ). Выбор данного гамма-спектрометра обусловлен тем, что он является портативным. Это являлось одним основных критериев выбора, так как УКХ, расположенные на площадке ДКХОЯТ установлены стационарно, без возможности их перемещения.

Измерения проводились согласно схемы обследования, включающей в себя 40 позиций (рисунок 1) с временем экспозиции – 60 с. При измерении использовался коллиматор с целью уменьшения влияния внешнего излучения от других контейнеров.



Рисунок 1. Схема обследования УКХ

Точки обследования лежат равномерно с определенным шагом на всей поверхности УКХ. После проведения ряда измерений суммарная активность в каждой точке сравнивалась с суммарной активностью, полученной ранее в тех же самых точках и на основании этого определялось наличие или отсутствие каких-либо процессов внутри УКХ.

Результаты и их обсуждение

Для разработки методики расчетной оценки состояния ОЯТ в режиме долговременного хранения первостепенно важно определить возможные уязвимые места системы. Предварительно проведена теоретическая оценка состояния ОЯТ внутри контейнеров. Целью расчёта являлась оценка величины МЭД при различных вариантах разрушения металлической облицовки чехла ТВС в УКХ.

Нейтронно-физические расчеты по определению МЭД от одиночного контейнера УКХ с ОЯТ проведены с помощью многоцелевой программы MCNP5 с использованием библиотек констант ENDF/B5 и ENDF/B6 [2]. Плотность потока излучения рассчитывалась при условии учета всех процессов, связанных с рассеянием и поглощением у-излучения и нейтронов. Перевод флюенса фотонного и нейтронного излучений в эквивалентную дозу осуществлялся с помощью коэффициентов, описанных в [3]. Расчетная модель УКХ для программы МСNP5 максимально приближена к реальной конструкции: заданы характеристики топлива, защита контейнера [4]. Все исходные данные, предположения и допущения принимались исходя из принципа консервативности расчета.

В результате расчетов установлено, что максимальные значения МЭД находятся на уровне ~2 м от днища контейнера, при этом для исходного варианта УКХ в неразрушенном состоянии составляют 36 мкЗв/ч на расстоянии 1 м и 0,54 мкЗв/ч на 10 м, а для варианта УКХ в полностью разрушенном состоянии – 550 мкЗв/ч и 6 мкЗв/ч соответственно.

При условии протекания каких-либо процессов по перемещению ОЯТ внутри контейнера изменения показательней вероятнее всего будут регистрироваться в местах максимальных значений МЭД и на дне внутреннего чехла (1 м от днища контейнера), соответственно их соотношение и будет основным показателем. Для исходного варианта УКХ в неразрушенном состоянии определено, что разница в значениях МЭД на уровне 1 и 2 м от днища контейнера составляет ~2,6.

Для определения точек, в которых планируется проведение мониторинга, полученные данные изначально визуализированы в виде плоскости (рисунок 2, а), а после нанесены на 3D-модели контейнеров с распределением по суммарной скорости счета γ-им-пульсов (рисунок 2, б).

Таким образом, обследовано 60 контейнеров, находящихся на долговременном хранении (рисунок 3). По результатам обследования установлено, что суммарная скорость счета у-импульсов варьирует от 500 до 23 000 CPS. Наименьшие значения регистрируются на контейнерах, расположенных в углах площадки ДХОЯТ, что, безусловно, связано с меньшим влиянием соседних контейнеров, но также, вполне возможно, связано с загрузкой в данные контейнеры ОЯТ с меньшей активностью по гамма-излучающим радионуклидам, чем в другие контейнеры. В пользу этого говорит тот факт, что контейнеры, находящиеся в центральной части (№№ 33 и 48), имеют максимальную суммарную скорость счета у-импульсов в районе 9 000 CPS, что меньше максимальной суммарной скорости счета у-импульсов (~14 000 CPS) углового контейнера № 15.





б)

Рисунок 2. Распределение по суммарной скорости счета у-импульсов: в виде развертки на плоскость (a); на 3D-модели контейнера (б)



Рисунок 3. Модель площадки ДКХОЯТ с нанесением распределения по суммарной скорости счета у-импульсов на УКХ

Из проведенного в рамках данной работы сопоставительного анализа следует, что для дальнейшего мониторинга состояния ОЯТ необходима оценка каждого отдельно взятого УКХ, так как небольшое перераспределение ПД в контейнере может не повлиять на общий фон. В ходе измерений установлено, что максимальные значения суммарной скорости счета γ - импульсов приходятся на высоту 2–2,5 м от днища контейнера. Средняя разница значений суммарной скорости счета γ -импульсов на уровне 1 и 2 м от днища контейнера составляет ~2,7.

При сопоставлении результатов теоретической оценки с экспериментальными данными, установлено, что в обоих случаях максимальные значения МЭД находятся на уровне ~2 м от днища контейнера. Также разница значений суммарной скорости счета γ-импульсов и МЭД на уровне 1 и 2 м от днища контейнера составляет 2,7 и 2,6 соответственно, что показывает хорошую сходимость результатов теоретической оценки с экспериментальными данными.

Учитывая результаты всех проведенных измерений и расчётов, определено, что высоты в 1 м и 2 м от днища контейнера будут максимально показательными для мониторинга. При условии протекания каких-либо процессов по перемещению ОЯТ внутри контейнера изменения значений суммарной скорости счета γ-импульсов на этих высотах будут наиболее информативны.

Заключение

В результате работ проведены у-спектрометрические измерения поверхности всех 60 контейнеров при помощи у-спектрометрического комплекса. На основании теоретической оценки приведены результаты расчета дозовых полей нейтронного и фотонного излучения, создаваемого одиночным контейнером с отработавшим ядерным топливом, с различными вариантами разрушения стенок ТВС и разной степенью осыпания топлива. Определены первоначальные значения, необходимые для проведения мониторинга состояния ОЯТ, а также время экспозиции и сеть обследования. При сопоставлении результатов теоретической оценки с экспериментальными данными, установлено, что оптимальными позициями для последующего мониторинга состояния ОЯТ в режиме долговременного хранения являются точки измерения на высотах 1 и 2 м от днища контейнера. Данные позиции являются максимально репрезентативными и в случае осыпания топлива, данный процесс отразится при мониторинговых измерениях. Последующий мониторинг планируется проводить ежеквартально в 8 позициях на каждом контейнере, всего 480 измерений, с временем экспозиции 60 с.

Работа выполнена в рамках темы «Исследование дозовых полей для мониторинга состояния ОЯТ реактора БН-350 в режиме долговременного сухого хранения» РБП 036 «Развитие атомных и энергетических проектов», подпрограммы 105 «Прикладные научные исследования технологического характера в сфере атомной энергетики», мероприятие «Развитие атомной энергетики в Республике Казахстан» на 2018–2020 гг.

Литература

- 1. Нечаев А., Онуфриев В., Томас К. Долговременное хранение и захоронение отработавшего топлива // Обращение с радиоактивными отходами: Бюл. МАГАТЭ. 1986. 17 с.
- 2. Briesmeister J.F. MCNP a general Monte-Carlo Code for neutron and photon Transport. LA-7396M, 1997.
- 3. Гигиенические нормативы. «Санитарно-эпидемиологические требования к обеспечению радиационной безопасности». Утверждены приказом Министра национальной экономики Республики Казахстан от 27 февраля 2015 г.
- ПБЯ-06-09-90. Правила ядерной безопасности при хранении и транспортировании ядерноопасных делящихся материалов: утв. Министерством атомной энергетики и промышленности 04 февраля 1991 г.

ҰЗАҚ УАҚЫТ САҚТАУ РЕЖИМІНДЕ ЖН-350 РЕАКТОРЫНЫҢ ПЯО ЖАЙ-КҮЙІН БАҒАЛАУ

¹⁾ П.Е. Кривицкий, ¹⁾ Е.В. Мустафина, ²⁾ И.В. Прозорова, ²⁾ А.А. Прозоров, ¹⁾ А.А. Чернов

¹⁾ ҚР ҰЯО РМК «Радиациялық қауіпсіздік және экология институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан ²⁾ ҚР ҰЯО РМК «Атом энергиясы институты» филиалы, Курчатов, Қазақстан

Мақалада, ЖН-350 реакторынан ПЯО бар контейнерлерді ү-спектрометриялық зерттеу нәтижелері келтірілген. Теориялық бағалау негізінде отынның әртүрлі құйылу дәрежесінің және ЖБҚ қабырғаларының бұзылуының түрлі нұсқаларымен, ядролық отын қалдықтары бар жалғызілік контейнерлерлерде пайда болатын нейтронды және фотонды сәуле шығару өрісінің дозасын есептеу нәтижелері келтірілді. ПЯО жай-күйін бақылау үшін қажетті бастапқы мәндер, сондай-ақ экспозиция уақыты мен зерттеу желісі анықталды.

Теориялық бағалау нәтижелерін тәжірибелік мәліметтермен салыстыру кезінде ұзақ мерзімді сақтау режимінде пайдаланылған ПЯО жай-күйін мониторингілеуден кейінгі оңтайлы позиция контейнер түбінен 2 м биіктіктегі өлшеу нүктелері екендігі анықталды. Бұл позициялар мүмкіндігінше өкілетті және жанармай құйылған жағдайда бұл процесс мониторингілік өлшеулерінде көрініс береді.

Кілт сөздер: ЖН-350, пайдаланылған ядролық отын (ПЯО), ұзақмерзімді сақтау, гамма-спектрометр.

ASSESSEMNT OF BN-350 SPENT NUCLEAR FUEL STATUS IN CONDITIONS OF A LONG-TERM STORAGE

¹⁾ P.Ye. Krivitsky, ¹⁾ Ye.V. Mustafina, ²⁾ I.V. Prozorova, ²⁾ A.A. Prozorov, ¹⁾ A.A. Chernov

¹⁾ Branch "Institute of Radiation Safety and Ecology" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan ²⁾ Branch "Institute of Atomic Energy" RSE NNC RK, Kurchatov, Kazakhstan

The article provides outputs of γ -spectrometric survey of containers containing nuclear spent fuel (SNF) of BN-350 reactor. Based upon a theoretical assessment, calculation results of dose fields of neutron and photon radiation produced by a single container with spent nuclear fuel are given, with various options of FA wall destruction and different rates of fuel fall. Initial values necessary for monitoring SNF status as well as the exposure time and a survey grid were determined. When comparing results of the theoretical assessment with experimental data, it was found that measurement points at a height of 2 m above the container bottom are optimal positions for the subsequent monitoring of SNF status in conditions of a long-term storage. These positions are the most representative and in case of fuel fall, this process will be shown in monitoring measurements.

Keywords: BN-350, spent nuclear fuel (SNF), long-term storage, gamma-spectrometer.

ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ПРОТОНОВ С ЭНЕРГИЕЙ 7 МЭВ С МЕДЬЮ

^{1,2)} Мукан Ж., ^{1,3)} Жолдыбаев Т.К., ¹⁾ Садыков Б.М., ¹⁾ Керимкулов Ж.К., ¹⁾ Насурлла М., ³⁾ Усабаева Г., ²⁾ Алиева Г., ²⁾ Темір Ш.

¹⁾ Институт ядерной физики МЭ РК, Алматы, Казахстан ²⁾ Евразийский Национальный Университет им. Гумилева, Астана, Казахстан ³⁾ Казахский Национальный Университет им. аль-Фараби, Алматы, Казахстан

Задачей данной работы являлось измерение сечения ядерных реакций ^{nat}Cu(p,xp) на изохронном циклотроне У-150М Института ядерной физики при энергии протонов 7 МэВ. Анализ экспериментальных результатов выполнен в рамках экситонной модели распада ядер, представляющей из себя статистический подход, описывающий переход возбужденного ядра в равновесное состояние. Теоретический анализ экспериментальных результатов выполнен в рамках расчетного кода *PRECO-2006*. Определено, что основной вклад в формирование интегрального сечения реакций (p,xp) дает механизм образования составного ядра. Полученные экспериментальные результаты могут быть использованы при конструировании гибридных ядерно-энергетических установок, а также в радиационном материаловедении.

Подкритический реактор, управляемый ускорителем (accelerator-driven system – ADS) это новый тип электроядерного реактора, состоящего из подкритического реактора и высокоэнергетического протонного ускорителя, который служит для получения нейтронов, вызывающих реакцию деления, в результате которой выделяется достаточно энергии, чтобы питать ускоритель и получать дополнительную энергию [1]. При создании таких установок для корректного моделирования нейтронного потока необходимы данные по спектральному составу и угловым распределениям вторичных протонов и легких заряженных частиц, образующихся при гашении первичного пучка в мишенном устройстве в диапазоне энергий налетающих протонов от единиц до десятков и сотен МэВ. Объектом исследования выбрана медь, которая является широко применяющимся конструкционным материалом в проектируемых электроядерных установок [2]. Были измерены дважды-дифференциальные сечения на ^{nat}Cu при энергии протонов 7 МэВ.

Измерения сечений ядерных реакций ^{nat}Cu(p,xp) были выполнены на изохронном циклотроне У-150М Института ядерной физики [3]. Исследование инклюзивных энергетических спектров и угловых распределений протонов из реакций (p,xp) выполнено при энергиях налетающих протонов 7 МэВ.

Камера рассеяния установлена на расстоянии 23,9 м от выхода пучка циклотрона. Максимальная угловая неопределенность системы коллиматоров, расположенной непосредственно перед камерой рассеяния, обеспечивала линейные размеры пучка на мишени ~3 мм. Юстировка камеры рассеяния относительно оси ионопровода осуществлялась оптическими методами. Энергетический разброс пучка составлял ~1,0%. Спектрометр частиц располагался на вращающейся крышке камеры рассеяния под углом 10° к плоскости реакции и мог быть установлен относительно оси пучка под углами $\theta_{ЛC}=10\div170^{\circ}$ с точностью 0,1°. Для определения числа частиц, падающих

на мишень, применялась система цилиндр Фарадея – интегратор тока. Погрешность в определении постоянной интегратора не превышала $\pm 1\%$. Давление во всей системе ускорения и проводки пучка составляло в среднем $5 \cdot 10^{-5}$ мм.рт.ст.

Идентификация продуктов реакций по массам и энергии проводилась на основе ($\Delta E - E$) методики и осуществляется системой многомерного программируемого анализа с использованием спектрометрических линеек на основе электроники фирм ORTEC и POLON, блок-схема которой представлена на рисунке 1. Сигналы от ΔЕ- и Е-детекторов поступают по двум спектрометрическим трактам («Е», «dE») на двумерный анализатор, выполненный на микроконтроллерах и представляющий собой выносной блок, подключаемый к USB-порту персонального компьютера. Системная программа задает режимы работы анализатора и передачу данных в компьютер, в программу для графической визуализации данных и сохранения их в его файлах. Выносной блок содержит также счетчик управляющих импульсов для оценки величины просчетов в набираемой двумерной матрице путем сопоставления их числа с интегральным количеством событий, зарегистрированных в поле матрицы, и два счетчика внешних событий (сигналов от интегратора тока пучка ускорителя и монитора мишени).

Для измерения однозарядных частиц использовали в качестве стопового полупроводниковый кремниевый детектор толщиной 2 мм, а в качестве пролетного детектора полупроводниковый кремниевый детектор с толщиной 25 мкм.

В качестве мишени использовалась самоподдерживающаяся медная фольга толщиной 3.5 мг/см² с естественным содержанием изотопов. Толщина определялась по потерям энергии α -частиц от тройного α -источника ^{241,243} Am + ²⁴⁴Cm при прохождении через мишень.



ЗЧПУ – зарядово-чувствительный предусилитель, Усил – усилитель, ЛЗ – линия задержки, СС – схема совпадений, ЛВ – линейные ворота, БЗ – блок задержки

Рисунок 1. Блок-схема системы регистрации и идентификации заряженных частиц

Энергетическая калибровка проводилась по пикам в исследуемых спектрах, отвечающих известным состояниям конечных ядер. Дважды дифференциальные сечения в лабораторной системе координат находились из соотношения:

$$\frac{d^2\sigma}{d\varepsilon_x d\Omega_x} = \frac{A_t z_x e I_n \cos \varphi_t}{\rho_t p N_0 \Delta \Omega_x \Delta Q}, \qquad (1)$$

где A_t – масса ядра мишени в а.е.м.; $z_x e$ – заряд налетающей частицы в микрокулонах; I – число отсчетов в канале n; φ_t – угол между рамкой мишени и пучком; ρ_t – толщина мишени (мг/см); p – обогащение мишени (относительные единицы); $N_0 = 6,02217 \cdot 10^{20}$ (мг·моль)⁻¹ – число атомов в одном миллиграмм-моле вещества; $e = 1,602192 \cdot 10^{-13}$ мкКл; $\Delta \Omega_n$ – телесный угол, стягиваемый коллиматором телескопа детекторов (ср); ΔE_n – ширина канала с номером n в МэВ; ΔQ – заряд, прошедший через мишень на интегратор тока за время экспозиции (мкКл).

Систематические ошибки измеренных сечений обусловлены, главным образом, погрешностями в определении толщины мишени (5%), калибровки интегратора тока (1%) и телесного угла спектрометра (1.3%). Энергия пучка ускоренных частиц измерялась с точностью 1%. Полная систематическая ошибка не превышала 10%.

Анализ экспериментальных результатов реакций (p,xp) на ядре ^{nat}Cu при $E_P = 7$ МэВ выполнен в рамках экситонной модели распада ядер [4], представляющей из себя статистический подход, описывающий переход возбужденного ядра в равновесное состояние. Она широко используется при интерпретации многих экспериментальных результатов. Одним из достоинств модели является то, что кинетические уравнения, на которых она основана, описывают весь процесс релаксации возбужденной ядерной системы, начиная от простейших квазичастичных конфигураций и заканчивая установлением статистического равновесия. Это, в частности, позволяет по-новому взглянуть на ставший уже традиционным механизм испускания частиц из составного ядра.

Разработанные быстрые методы решения кинетических уравнений открыли возможность изучения многочастичной эмиссии частиц. Модель описывает одновременно энергетические спектры не только нуклонов, но и сложных частиц. К тому же оказалось, что экситонная модель очень удобна для введения в нее дополнительных физических моделей и в настоящее время в ней учитываются парные корреляции нуклонов в ядре, оболочечная структура и изотопический спин.

В рамках двухкомпонентоной экситонной модели принимается, что ядро характеризуется параметрами p_{π} , h_{π} , p_{ν} и h_{ν} , где p и h обозначают частичные и дырочные, а π и ν – протонные и нейтронные степени свободы, соответственно. Принимается, что компаунд ядро формируется с частично-дырочной конфигурацией, которая учитывает только налетающие нуклоны как частичные степени свободы и не учитывает дырочные степени свободы. Такая конфигурация обозначается как $(p_{\pi}, h_{\pi}, p_{\nu}, h_{\nu}) = (Z_a, 0, N_a, 0)$, где *а* относится к бомбардирующей частице.

Разность между числом частиц и дырок в процессе перехода в равновесное состояние остается постоянной и для компаунд ядра $p_{\pi} - h_{\pi} = Z_a, p_{\nu} - h_{\nu} = N_a$ и p $-h = A_a$, где A_a массовое число налетающей частицы. Это условие не всегда верно, особенно при приближении к состоянию равновесия, но вполне адекватно для предравновесных вычислений.

Теоретический анализ экспериментальных результатов выполнен в рамках расчетного кода *PRECO-2006* [5], который был оптимизирован для рассматриваемого случая. В качестве исходной бралась (p_{π} , h_{π} , p_{ν} , h_{ν}) = (1, 0, 0, 0) частично–дырочная конфигурация. Нормировочный коэффициент K_g принимался равным 15 МэВ. При параметризации квадрата матричных элементов использовались значения нормировочных констант: $K_{\pi\pi}$: $K_{\pi\nu}$: $K_{\nu\nu}$ = 2200:900:900 МэВ². При определении сечений реакций, необходимых для расчетов, использовались параметры оптического потенциала Becchetti-Greenlees [6] для протонов.

В дополнение к вычислениям в рамках экситонной модели, были проведены расчеты в рамках других механизмов ядерных реакций: прямых процессов (передача – выбивание нуклонов, неупругое рассеяние) и равновесного излучения с использованием формализма Вайскопфа распада составного ядра.

На рисунке 2 приведено сравнение теоретических и экспериментальных дважды-дифференциальных сечений реакций (p,xp) на ядре ^{nat}Cu при энергии протонов 7 МэВ. Установлено, что основной вклад в формирование интегрального сечения реакций (p,xp) дают составные процессы. Вклад одноступенчатых прямых механизмов в реакции (p,xp) незначителен.



Рисунок 2. Сравнение экспериментальных дважды-дифференциальных сечений реакций Си(p,xp) при энергии 7 МэВ с расчетами в рамках экситонной модели

174



Полученные экспериментальные результаты восполняют базу ядерных данных по сечениям реакций и могут быть использованы при конструировании безопасных и безотходных гибридных ядерно-энергетических установок.

Литература

- 1. Герасимов А.С., Киселев Г.В. Научно-технические проблемы создания электроядерных установок для трансмутации долгоживущих радиоактивных отходов и одновременного производства энергии (российский опыт) // ЭЧАЯ. 2001. Вып.1, № 32. С. 143–188.
- 2. Ikeda Y. Nuclear Data Relevant to Accelerator Driven System // Journal of Nuclear Science and Technology. 2002. Suppl. 2. P. 13–18.
- 3. Арзуманов А.А., Неменов Л.М., Анисимов О.И. и др. Изохронный циклотрон с регулируемой энергией ионов // Изв. АН КазССР, сер. физ.-мат. 1973. № 4. С. 6–15.
- 4. Griffin J.J. Statistical model of intermediate structure // Phys.Rev. Lett. 1966. Vol. 17. P. 478-481.
- Kalbach C. PRECO-2006: Program for Calculating Pre-equilibrium and Direct Reaction Double Differential Cross-Sections. LA–10248–MS, February 2006.
- Becchetti F.D., Greenlees G.W. Nucleon-nucleus optical-model parameters, A340, E<50 MeV // Phys. Rev. 1969. C 182. P. 1190–1209.

7 МэВ ПРОТОНЫНЫҢ МЫСПЕН ӘРЕКЕТТЕСУІ

^{1,2)} Ж. Мукан, ^{1,3)} Т.К. Жолдыбаев, ¹⁾ Б.М. Садыков, ¹⁾ Ж.К. Керимкулов, ¹⁾ М. Насурлла, ³⁾ Г. Усабаева, ²⁾ Г. Алиева, ²⁾ Ш. Темір

¹⁾ Ядролық физика институты, Алматы, Казақстан
²⁾ Гумилев ат. Еуразия Ұлттық Университеті, Нұр-Сұлтан, Казақстан
³⁾ әл-Фараби ат. Қазақ Ұлттық Университеті, Алматы, Казақстан

Жұмыстың мақсаты энергиясы Е_p=7 МэВ болатын ^{nat}Cu(p,xp) ядролық реакцияларының қималарын Ядролық физика институтының У-150М изохронды циклотронында зерттеу болып табылады. ^{nat}Cu ядросының рекцияларының эксперименттік нәтижелерін талдау қозған ядроның тепе-теңдік күйге өтуін сипаттайтын статистикалық тәсіл болып табылатын ядро ыдырауының экситонды моделі аясында жүргізілді. Эксперимент нәтижелерін теориялық тұрғыдан талдау *PRECO-2006* есептеу коды шеңберінде жүргізілді. Алынған эксперименттік нәтижелер үлкен ядролық-энергетикалық қондырғылады жасауда, сондай-ақ радиациялық материалтануда қоланылуы мүмкін.





INTERACTION OF 7 MeV ENERGY PROTONS WITH COOPER

^{1,2)} Zh. Mukan, ^{1,3)} T.K. Zholdybayev, ¹⁾ B.M. Sadykov, ¹⁾ Zh.K. Kerimkulov, ¹⁾ M. Nassurlla, ³⁾ G. Ussabayeva, ²⁾ G. Alieva, ²⁾ Sh. Temir

¹⁾ Institute of Nuclear Physics, Almaty, Kazakhstan ²⁾ Gumilyov Eurasian National University, Nur-Sultan, Kazakhstan ³⁾ Al-Farabi Kazakh National University, Almaty, Kazakhstan

The aim of this work was to measure the cross section of nuclear reactions ^{nat}Cu(p,xp) on the isochronous cyclotron U-150M of the Institute of nuclear physics at the energy $E_p=7$ MeV. The analysis of the experimental results of these reactions on the ^{nat}Cu is carried out in accordance with the exciton model of nuclear decay, which is a statistical approach describing the transition of the excited core to an equilibrium state. The theoretical analysis of the experimental results was performed in the framework of the *PRECO-2006* calculation code. The obtained experimental results can be used in the design of hybrid nuclear power plants, as well as in radiation materials science.

СПИСОК АВТОРОВ

Gahramanli L.R., 14 Абдигамитов Б.А., 49 Абишева М.Т., 5 Айдарханов А.О., 5, 49, 87 Айдарханова А.К., 41, 93 Аксенова Т.И., 70 Алиева Г., 171 Аристова И.Л., 112 Аубакирова Д.М., 21 Бакланова Ю.В., 154 Баятанова Л.Б., 26 Божко В.В., 154 Витюк В.А., 80 Витюк Г.А., 80 Вурим А.Д., 80 Дзюбан А.В., 61 Емельяненко Е.В., 61 Ердыбаева Н.К., 21 Жанболатов О.М., 55 Жолдыбаев Т.К., 171 Зверева И.О., 100 Иванова А.Р., 160 Иркимбеков Р.А., 55, 144 Кабдыракова А.М., 128

Каширский В.В., 100 Кенесарина А.О., 119 Кенжина Л.Б., 119 Керимкулов Ж.К., 171 Кожаханов Т.Е., 160 Козловский А.Л., 10 Котов В.М., 33 Кривицкий П.Е., 5, 154, 167 Круглыхин А.А., 128, 134 Кумисханова С.Б., 93 Ларионова Н.В., 87, 160 Ляхова О.Н., 41, 49, 93, 134 Мамырбаева А.Н., 119 Михайлова Н.Н., 105 Монаенко В.Н., 154 Мукамбаев А.С., 105 Мукан Ж., 171 Мустафина Е.В., 5, 154, 167 Насурлла М., 171 Пичугин В.Ф., 21 Полевик В.В., 87 Понкратов Ю.В., 144 Прозоров А.А., 167

Прозорова И.В., 167 Раимканова А.М., 41 Рахадилов Б.К., 26 Рахымжанова К.Б., 26 Сагдолдина Ж.Б., 21, 26 Садыков Б.М., 171 Сержанова З.Б., 41 Сәндібек А.Қ., 26 Скопченко М.Е., 5 Смирнов А.А., 105 Соколова И.Н., 112 Сураев А.С., 144 Тарутин И.Г., 61 Темір Ш., 171 Тимонова Л.В., 41, 49 Тлеуканов Е.Н., 93 Топорова А.В., 87 Турченко Д.В., 128, 134 Умаров М.А., 5, 154 Усабаева Г., 171 Хромушин И.В., 70 Чернов А.А., 167 Шевченко Ю.С., 87

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.

Текст печатается на листах формата A4 (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 подрисуночных подписей.

Текст печатается через одинарный межстрочный 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 аннотация к статье на русском языке, ключевые слова и основной текст. В конце статьи, после списка литературы, повторяются блоки «название, авторы, организации, аннотация, ключевые слова» на казахском и английском языке.

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 ключевых слов, 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 ГОСТ 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 растровых (*.tif, *.gif, *.png, *.jpg с разрешением 600 dpi) или векторных (*.wmf, *.svg) форматов.
- 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:

- 2 рецензии высококвалифицированных специалистов (докторов наук) в соответствующей отрасли науки;
- выписка из протокола заседания кафедры или методического совета с рекомендацией к печати;
- акт экспертизы (экспертное заключение);
- сведения об авторах (в бумажном и электронном виде): ФИО (полностью), наименование организации и ее полный адрес, должность, ученая степень, телефон, e-mail.

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, электронной почты.

Статьи, оформление которых не соответствует указанным требованиям, к публикации не допускаются.

Ответственный секретарь к.ф.-м.н. В.А. Витюк тел. (722-51) 3-33-35, E-mail: VITYUK@NNC.KZ

Технический редактор И.Г. Перепелкин тел. (722-51) 3-33-33, E-mail: IGOR @NNC.KZ

Адрес редакции: 071100, Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом, 2Б https://www.nnc.kz/publications/bulletin.html

© Редакция журнала «Вестник НЯЦ РК», 2020

Свидетельство о постановке на учет №17039-Ж от 13.04.2018 г. Выдано Комитетом информации Министерства информации и коммуникаций Республики Казахстан

Тираж 300 экз.

Выпуск набран и отпечатан в типографии Национального ядерного центра Республики Казахстан 071100, Казахстан, г. Курчатов, ул. Бейбіт атом, 2Б



