Том 13, номер 6, 2022

БЕЗОПАСНОСТЬ ЯДЕРНЫХ РЕАКТОРОВ	
Системы нормативных документов, регламентирующих разработку и внедрение цифровых систем контроля и управления атомных станций	
И. Д. Ракитин, С. Б. Чебышов	525
Построение измерительных каналов автоматизированных систем радиационного контроля АЭС большой мощности с учетом проектных требований объектов контроля	
Е. М. Ветошкин, А. С. Гордеев, А. А. Иванов, А. В. Калин, Р. А. Насибуллин, С. Б. Чебышов, И. И. Черкашин	531
РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ МАТЕРИАЛОВ И АППАРАТУРЫ	
Влияние облучения ионами Fe на наноструктуру дисперсно-упрочненных оксидами сталей при 500°C	
С. В. Рогожкин, А. В. Клауз, А. А. Богачев, А. А. Хомич, П. А. Федин, О. А. Разницын	535
ПЕРСПЕКТИВНЫЕ КОНСТРУКЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ	
Формирование перспективных пленочных электродных систем с использованием различных методов вакуумного напыления	
С. Г. Давыдов, А. Н. Долгов, А. А. Козлов, В. А. Максимов, В. О. Ревазов, Р. Х. Якубов	545
ТВЕРДЫЕ ТЕЛА В ЭКСТРЕМАЛЬНЫХ УСЛОВИЯХ	
Модифицирование углерод-углеродных композиционных материалов при высокодозном воздействии ионов плазмы термоядерных установок	
Н. Н. Андрианова, А. М. Борисов, Е. С. Машкова, М. А. Овчинников	550
Критическое поведение металлов, актинидов и металлического плутония при высокоинтенсивном внешнем воздействии	
Н. И. Сельченкова, А. Я. Учаев	558
ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ	
Оптическая эмиссионная спектроскопия для исследования области взаимодействия плазменного потока с вольфрамовым образцом	
Д. И. Кавыршин, В. П. Будаев, С. Д. Федорович, А. В. Карпов, В. Ф. Чиннов, М. В. Лукашевский, К. В. Чан, Е. А. Муравьева, А. С. Мязин, А. А. Коньков, К. А. Рогозин	569
Черенковское излучение как способ анализа вещества	
В. А. Басков, В. В. Полянский	577
Влияние эффекта доплера на спектры гамма-квантов при неупругом рассеянии меченых нейтронов на ядрах углерода и азота	
С. Г. Беличенко, М. Д. Каретников, А. Д. Мазницин	588
РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ	
Доза облучения населения в 2020 г.	
В. В. Костерев, А. Г. Цовьянов, А. Г. Сивенков, В. Е. Журавлева	594

Средства мониторинга объемной активности жидких сред АО "СНИИП" и их развитие

А. В. Редкоус, А. А. Иванов, А. В. Калин, М. Д. Дерябина, М. К. Савельев, В. Р. Минниханов

МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА

In vivo исследование лазерно-аблированных золотых наночастиц как дозоповышающих агентов для бинарной лучевой терапии злокачественных новообразований	
В. А. Скрибицкий, Ю. А. Финогенова, А. А. Липенгольц, Н. В. Позднякова, А. В. Смирнова, К. Е. Шпакова, Е. Ю Григорьева	605
ПСМА-специфичные радиофармпрепараты для визуализации и терапии рака предстательной железы	
В. К. Тищенко, В. М. Петриев, О. П. Власова, В. В. Крылов, П. В. Шегай, С. А. Иванов, А. Д. Каприн	611
Оптимизация процессов формирования пористых структур кремния с пониженной цитотоксичностью	
А. Р. Илясов, Е. А. Гостева, В. В. Старков	617
Формирование титановых нанотрубок на поверхности дентальных имплантатов	
Е. А. Гостева, А. Б. Дымников, М. В Чичков, Э. Харка, М. Х. Ахмад	621

Vol. 13, No. 6, 2022

Safety of Nuclear Reactors	
Systems of Regulatory Documents Governing the Development and Implementation of Digital Monitoring and Control Systems for Nuclear Plants	
I. D. Rakitin and S. B. Chebyshov	525
Construction of the Measuring Channels for the High Power NPPs Automated Radiation Monitoring Systems Subject to the Monitoring Objects Design Requirements	
E. M. Vetoshkin, A. S. Gordeev, A. A. Ivanov, A. V. Kalin, R. A. Nasibullin, S. B. Chebyshov, and I. I. Cherkashin	531
Radiation Resistance of Materials and Equipment	
Influence of Fe Ion Irradiation at 500°C on the Nanostructure of Oxide Dispersion-Strengthened Steels	
S. V. Rogozhkin, A. V. Klauz, A. A. Bogachev, A. A. Khomich, P. A. Fedin, and O. A. Raznitsyn	535
Promising Construction Materials	
Creation of Promising Thin Film Electrode Using Vacuum Deposition Methods	
S. G. Davydov, A. N. Dolgov, A. A. Kozlov, V. A. Maksimov, V. O. Revazov, and R. Kh. Yakubov	545
Solids under Extreme Conditions	
Modification of Carbon–Carbon Composite Materials under High-Fluence Irradiation of Fusion Plasma Ions	
N. N. Andrianova, A. M. Borisov, E. S. Mashkova, and M. A. Ovchinnikov	550
On Critical Behavior of Metals, Actinides and Plutonium Metal on High-Intensity Exposure	
N. I. Sel'chenkova and A. Ya. Uchaev	558
Interaction of Plasmas, Particle Beams, and Radiation with Matter	
Optical Emission Spectroscopy for Studying the Region of Interaction between a Plasma Flow and a Tungsten Sample	
D. I. Kavyrshin, V. P. Budaev, S. D. Fedorovich, A. V. Karpov, V. F. Chinnov, M. V. Lukashevsky, Q. V. Tran, E. A. Muravieva, A. S. Myazin, A. A. Konkov, and K. A. Rogozin	569
Cherenkov Radiation as a Method of Substance Analysis	
V. A. Baskov and V. V. Polyansky	577
Impact of the Doppler Effect on the Spectra of Gamma Rays in Inelastic Scattering of Tagged Neutrons by Carbon and Nitrogen Nuclei	
S. G. Belichenko, M. D. Karetnikov, and A. D. Maznitsyn	588

Radiation Safety

Radiation Dose of the Population in 2020

V. V. Kosterev, A. G. Tsovyanov, A. G. Sivenkov, and V. E. Zhuravleva

Means of Monitoring The Volumetric Activity of Liquid Media of JSC "SNIP" and Their Development	
A. V. Redkous, A. A. Ivanov, A. V. Kalin, M. D. Deryabina, M. K. Savelev, and V. R. Minnihanov	601
Medical Physics and Biophysics	
In Vivo Studies of Laser-Ablated Gold Nanoparticles as Dose Enhancers for Binary Radiotherapy of Cancer	
V. A. Skribitsky, Yu. A. Finogenova, A. A. Lipengolts, N. V. Pozdniakova, A. V. Smirnova, K. E. Shpakova, and E. Yu. Grigorieva	605
PSMA-Specific Radiophamaceuticals for Imaging and Therapy of Prostate Cancer	
V. K. Tishchenko, V. M. Petriev, O. P. Vlasova, V. V. Krylov, P. V. Shegai, S. A. Ivanov, and A. D. Kaprin	611
Formation Processes Optimization of Porous Silicon Structures with Reduced Cytotoxicity	
A. R. Iliasov, E. A. Gosteva, and V. V. Starkov	617
Formation of Titanium Nanotubes on the Surface of Dental Implants	
E. A. Gosteva, A. B. Dymnikov, M. V. Chichkov, E. Harka, and M. Kh. Ahmad	621

УДК 006.85;006.022

СИСТЕМЫ НОРМАТИВНЫХ ДОКУМЕНТОВ, РЕГЛАМЕНТИРУЮЩИХ РАЗРАБОТКУ И ВНЕДРЕНИЕ ЦИФРОВЫХ СИСТЕМ КОНТРОЛЯ И УПРАВЛЕНИЯ АТОМНЫХ СТАНЦИЙ

© 2022 г. И. Д. Ракитин^{а,} *, С. Б. Чебышов^а

^аАО "Специализированный научно-исследовательский институт приборостроения", Москва, 123060 Россия

**E-mail: igor.rakitin@gmail.com* Поступила в редакцию 11.07.2022 г. После доработки 11.07.2022 г. Принята к публикации 18.07.2022 г.

Выполнен анализ соответствия отечественных и основных международных систем стандартов, научно-технической документации и руководств по цифровым системам контроля и управления атомных станций (AC), включая документы Международной электротехнической комиссии (MЭK), Международного агентства по атомной энергии (МАГАТЭ), Комиссии по ядерному регулированию (NRC) США, Института Инженеров по Электротехнике и Электронике (IEEE) США и др. Сформулированы рекомендации по номенклатуре и содержанию разрабатываемых в российской атомной отрасли нормативных и методических документов по стандартизации, а также по их гармонизации с международными системами и документами.

Ключевые слова: системы стандартов, Международная электротехническая комиссия (МЭК), Международное агентство по атомной энергии (МАГАТЭ), нормативно-техническая документация, разработка, цифровые системы контроля и управления, атомные станции (АС)

DOI: 10.56304/S2079562922030381

РАЗЛИЧНЫЕ СИСТЕМЫ СТАНДАРТОВ

Трудно переоценить роль системы стандартов и нормативной документации для любой отрасли промышленности и вообще производства. Тем более велика и значима их роль в атомной промышленности и, в частности, в ядерном приборостроении и средствах автоматизации. Однако на международном и мировом уровне исторически возникло и до сих пор продолжается значительное рассогласование и расхождение между различными системами стандартов. Две крупнейшие международные организации разрабатывают стандарты в области ядерного приборостроения и, в частности, в области АСУ ТП АС: Международная электротехническая комиссия (МЭК) и Институт инженеров в области электротехники и электроники (IEEE). Долгое время эти организации работали независимо друг от друга, что обуславливает некоторые различия в подходах и требованиях, относящихся к одним и тем же вопросам. Различные третьи страны, развивающие или планирующие использовать атомную энергетику, ориентируются либо на стандарты МЭК (ЕЭС, ряд стран Азии) либо на ІЕЕЕ (США, Канада, Южная Америка, Южная Корея и большинство стран Азии).

Наконец, особняком стоит Российская Федерация, унаследовавшая от СССР вместе с мощнейшим атомным промышленным комплексом еще и особую систему ГОСТов, а также собственную систему НТД, по ряду базовых понятий и принципов совершенно "перпендикулярную" обо-им международным системам.

В настоящее время обозначения ГОСТ относятся к стандартам, принятым еще в советские времена и не утратившим своей действенности и актуальности по настоящее время. Стандарты, принятые в РФ, имеют обозначение ГОСТ Р. Наконец, стандарты, являющиеся строгими аутентичными и официально утвержденными переводами международных стандартов, носят обозначения этих международных организаций. Например, ГОСТ Р МЭК – официальный перевод стандарта МЭК, а ГОСТ Р ISO – официальный перевод стандарта ISO.

Причины "собственного отечественного пути" понятны и объяснимы, исходя из автономного, независимого и строго секретного пути развития отечественной атомной индустрии и энергетики, начиная с легендарных лет ее создания в годы "холодной войны" и вплоть до (80-х—90-х) годов прошлого столетия. Следует отметить, что известная "перпендикулярность" ряда отечественных стандартов по сравнению с международными вовсе не означает априори какой-либо их "ущербности". Более того, отдельные стандарты и представители отечественной НТД являются даже гораздо более завершенными как функционально, так и логически. Однако следует признать, что значительная часть системы отечественных стандартов представляет серьезные затруднения для экспорта Российских атомных технологий, включая АЭС, за рубеж.

Общее торможение и даже застой развития отечественной промышленности и технологии в (1980-е–1990-е) годы не могли не привести к торможению развития и совершенствования НТД, в том числе и в атомной отрасли. Но на условном "Западе" наблюдалось интенсивное развитие современных передовых цифровых компьютерных технологий, повлекшее за собой развитие и создание соответствующих этому новому уровню стандартов. Маркетинговые и мощные финансовые возможности крупнейших западных корпораций позволили им захватить большую долю международного "атомного" рынка, в том числе и в области стандартизации атомной отрасли.

Это вызвало серьезную обеспокоенность экспертов, научно-технической общественности и руководителей отечественной атомной отрасли. и Росстандарт создал Технический комитет ТК 322 "Атомная техника", которому поручил разобраться с задачами развития стандартизации Российской атомной отрасли, важнейшей из которых является согласование с международной активностью в этой области, или "гармонизация Российских и международных стандартов". Подкомитет ПК 7 "Автоматизированные системы управления технологическими процессами атомных станций» ТК 322 "Атомная техника" был создан и функционирует, в основном в качестве общественного органа поддержки в РФ разработки, внедрения и сопровождения международных стандартов (IEC (МЭК), ISO (ИСО), МАГАТЭ, IEEE и др.), а также отечественных стандартов и НТД, относящихся к тематике АСУ ТП АС.

СТАНДАРТЫ МЭК, IEEE И ТРЕБОВАНИЯ МАГАТЭ И NRC

Стандарты МЭК для электротехнических и электронных систем и оборудования важных для безопасности АЭС разрабатываются в подкомитете 45А "Контроль и управление на ядерных объектах" Технического комитета 45 (ТК 45) "Ядерное приборостроение". Российские эксперты и специалисты принимают самое активное участие в работе ТК 45 практически с самого его возникновения, поэтому его стандарты получили в РФ всеобщее признание и распространение. В 1981 г. было достигнуто официальное Соглашение о сотрудничестве между МАГАТЭ и Техническим комитетом ТК 45 МЭК "Ядерное приборостроение", где, в частности, определено, что:

• МАГАТЭ является Международной организацией, ответственной за разработку принципов безопасности (в виде Руководств МАГАТЭ) при осуществлении контроля, управления и проектирования электротехнических и электронных систем и оборудования для атомных электростанций;

• Технический комитет ТК 45 МЭК является ответственным за разработку требований к проектированию, реализующих эти принципы в виде стандартов, разрабатываемых и корректируемых в подкомитете 45А; эти принципы конкретизируются в виде требований к системам контроля и управления (СКУ), важными для безопасности АЭС;

• ТК 45 приглашается к участию в разработке соответствующих руководств по безопасности МАГАТЭ, а МАГАТЭ приглашается к участию в заседаниях и практической деятельности ТК 45.

Содержание и степень "жесткости" (строгости) требований стандартов МЭК определяется конкретным видом оборудования и степенью его важности для безопасности. В свою очередь важность системы или оборудования для безопасности определяется важностью для безопасности тех функций, которые данное оборудование выполняет.

Важно отметить, что, благодаря широкому применению компьютерной техники, выполнение конкретной функции может быть распределено по нескольким системам, так же, как и конкретная система может быть задействована в выполнении нескольких функций, причем часто одна система выполняет функции, отличающиеся по степени безопасности. В этих условиях нельзя (по крайней мере, затруднительно) жестко связать систему и выполняемую ею функцию. Поэтому необходимо (или приходится) отдельно осуществлять категоризацию функций и классификацию систем по степени их важности для безопасности. Это обстоятельство приводит к дополнительным расхождениям между отечественными и международными стандартами и НТД, которые могут явиться еще одним фактором, инициирующим выполнение требований по гармонизации.

Таким образом, в серии стандартов, создаваемых в ПК 45А, последовательно реализуются и детализируются принципы и базовые аспекты безопасности, предусмотренные основными Правилами, Требованиями и Руководствами МАГАТЭ по безопасности атомных электростанций. Поэтому 5 Правил и Руководств МАГАТЭ (с официальными обозначениями SSR-2/1, SSR-2/2, SSG-30, SSG-39, SSG-54) следует отнести к документам высшего уровня иерархии по сравнению со стандартами МЭК.

Стандарт или РД	Классы по важности для безопасности								
ОПБ НП-001-15	Кл	acc 4	Кла	acc 3	Класс 2	Класс 1			
Μαγατρ	Системы не важные для безопасности		Системы						
SSR-2/1			Системы, с безопас	связанные с сностью	Системы безопасности	Нет			
МЭК 61226	Вне классов	Кла	cc C	Класс В	Класс А	Нет			
IEEE 603	Не класс 1 Е Класс 1 Е								

Таблица 1. Классы безопасности в различных нормативных системах

В серии стандартов ПК 45А до 2020 г. единственным документом первого (наиболее высокого) уровня иерархии являлся стандарт МЭК 61513. В этом стандарте рассматриваются требования к системам контроля и управления, важным для безопасности АЭС, и он лежит в основе серии стандартов ПК 45А. В 2020 г. был принят еще один стандарт первого (наиболее высокого) уровня иерархии. Это стандарт МЭК 63046. В этом стандарте рассматриваются основные требования к электротехническим системам и системам электропитания, обеспечивающим системы контроля и управления, важные для безопасности АЭС, и он теперь также лежит в основе серии стандартов ПК 45А.

В двух обобщающих стандартах первого уровня МЭК 61513 и МЭК 63046 имеются непосредственные ссылки на другие стандарты ПК 45А, детализирующие и конкретизирующие такие общие вопросы как:

• категоризация функций и классификация I&C систем и электротехнических систем,

- оценка соответствия,
- разделение систем,
- защита от отказов по общей причине,

 аспекты программного обеспечения компьютерных систем,

• аспекты технического обеспечения компьютерных и электротехнических систем,

• проектирование пунктов управления и

• кибербезопасность.

Стандарты МЭК, на которые имеются непосредственные ссылки из стандартов МЭК 61513 и МЭК 63046, рекомендуется использовать совместно с этими стандартами в качестве согласованной подборки руководящих документов. Эти стандарты относятся ко второму уровню иерархии.

Прочие стандарты ПК 45А, на которые в стандартах МЭК 61513 и МЭК 63046 нет непосредственных ссылок, являются стандартами, связанными с конкретным оборудованием, техническими методами или конкретной деятельностью. Обычно эти документы относятся к низшему (третьему) уровню. В них по общим вопросам имеются ссылки на документы более высокого уровня, которые могут использоваться самостоятельно.

Наконец, к четвертому уровню иерархии документов МЭК относятся технические отчеты (TR), которые не имеют нормативного характера.

По аналогии отметим, что в США иерархическая структура построения стандартов IEEE, таких, например, как [1, 2], подчиняется требованиям Регулятора США, а документ Регулирующей комиссии США (NRC) 10 CFR 50 [3] является высшим документом NRC в части требований к проектированию атомных станций и, в некотором смысле, аналогичен документу МАГАТЭ SSR-2/1.

В РФ нормативными правовыми документами высшего уровня являются Федеральные законы и Указы Президента РФ. За ними следуют такие подзаконные акты, как Постановления Правительства РФ и/или соответствующего Федерального ведомства в рамках своей компетенции и полномочий. Далее следуют Федеральные нормы и правила (ФНП), где наиболее важными для обеспечения безопасности при разработке, создании, эксплуатации и сопровождении АСУ ТП АЭС являются НП-001-15 и НП-026-16 [4, 5].

О РАЗЛИЧНЫХ КЛАССИФИКАЦИЯХ ОБОРУДОВАНИЯ АЭС

Сравнение различных классификаций оборудования АЭС (табл. 1) по степени его важности для безопасности проводилось для четырех систем по документам:

1. Российский документ НП-001-15 "Общие положения обеспечения безопасности атомных станций" [4].

2. Международный стандарт МЭК 61226-2020 "Атомные электростанции. Системы контроля и управления, важные для безопасности. Классификация функций контроля и управления" [6].

3. Требования МАГАТЭ SSR-2/1: 2016 "Безопасность ядерных энергетических реакторов. Требования к проектированию".

4. Стандарт IEEE 603-1998 "Критерии для систем безопасности атомных электростанций. Описание" [1].

Как слелует из анализа, несмотря на опрелеленную корреляцию классификации элементов, систем и выполняемых ими функций, нет однозначного соответствия между категориями стандарта МЭК 61226, Руководства МАГАТЭ SSR-2/1 и классами безопасности российского документа НП-001-15. Важно отметить, что российский документ охватывает все оборудование (электронное и неэлектронное), при этом к 1-му классу безопасности отнесены непосредственно твэлы и то оборудование, отказ которого может привести к запроектной аварии с разрушением твэлов. В отличие от российского документа, стандарт МЭК 61226 охватывает только электронное (и электротехническое) оборудование, поэтому категории, соответствующей российскому классу 1, в этом стандарте нет. Еще одно отличие заключается в том, что в российском документе классификация по безопасности дополнена классификацией по назначению (системы и элементы нормальной эксплуатации и системы и элементы безопасности) и классификацией по характеру выполняемых функций (защитные; локализующие; обеспечивающие; управляющие).

В документе IEEE 603 [1] также имеется классификация электротехнического и электронного оборудования АС. В этой классификации предусмотрено только два класса безопасности: оборудование класса 1Е и оборудование, не относящееся к данному классу. Класс 1Е определяется как класс оборудования и систем, играющих существенную роль для аварийного останова реактора, изоляции контейнмента (герметичной оболочки безопасности), для охлаждения активной зоны реактора и для отвода тепла от реактора и контейнмента, а также предотвращающих значительные выбросы радиоактивных веществ в окружающую среду. В примечании к данному определению указано, что оно носит функциональный характер. Оборудование и системы относят к классу 1Е только в том случае, если они выполняют функции, перечисленные в определении. Классификация, базирующаяся на каких-либо других основаниях – неправомерна.

ТРЕБОВАНИЯ К РАЗРАБОТКЕ ЦИФРОВЫХ СИСТЕМ БЕЗОПАСНОСТИ АС

В отечественной нормативной базе, к сожалению, до сих пор нет руководящих документов, устанавливающих общие требования к разработке систем безопасности AC, реализованных на базе компьютерной техники. Кроме того, даже общие требования к традиционным системам безопасности в Российских стандартах существенно отличаются от аналогичных требований международных стандартов.

Поэтому было выполнено сравнение критериев и требований по безопасности, изложенных в IEEE (стандарты Std 603-1998 и Std 7-4.3.2-1993 [1,2]) с критериями и требованиями аналогичных российских стандартов и ФНП [4, 5, 7, 8].

Стандарт [8] содержит требования только к системам управления и защиты (СУЗ). Он был выпущен незадолго до Чернобыльской аварии и первоначально был основан на устаревшей версии [7]. Затем, после выпуска новой версии [8] этот стандарт был пересмотрен и во многим повторяет [7], но также содержит новые количественные требования к надежности СУЗ.

Проведенный анализ показал, что стандарты IEEE Std 603-1998 и IEEE Std 7-4.3.2-1998 являются хорошо структурированными и сбалансированными документами высшего уровня, в которых описаны основные критерии, а также общие функциональные и проектные требования к управляющей и измерительной частям систем безопасности всех типов.

К сожалению, для этих стандартов нет близких Российских аналогов, область применения и назначение которых полностью совпадала бы с областью применения и назначением стандартов IEEE, и в которых был бы реализован такой же системный и сбалансированный подход. В Российских стандартах часто не соблюдается принятые в международном сообществе терминология (определения системы защиты, квалификации оборудования, эксплуатационных байпасов и т.п.) и классификация. Например, классификация систем и категоризация функций по их важности для безопасности АЭС проводятся отдельно. Это одна из причин, по которым гармонизация российских и международных стандартов является весьма непростой задачей.

В большинстве случаев критерии и требования, изложенные в IEEE Std 603-1998 и IEEE Std 7-4.3.2-1998, являются даже более строгими, чем в российских стандартах. Например: проведение защитных мероприятий; качество; независимость в отношении физического разделения и барьеров для каналов системы безопасности, и еще более 10 критериев.

Однако есть несколько важных случаев, когда требования российских стандартов являются более строгими, например:

критерий единичного отказа (степень резервирования). Требования превышают простое применение критерия единичного отказа для системы

аварийной защиты: в соответствии с этим стандартом должно быть, как минимум, две независимых группы устройств защиты, каждая из которых должна содержать 3 независимых канала для защиты реактора по возрастанию нейтронной мощности и по скорости ее возрастания с логикой голосования, как минимум, 2 из 3 для каждой такой группы.

– надежность. В российских стандартах и ФНП приведены более детальные и строгие требования по вероятностной оценке безопасности с установлением допустимых вероятностей возможных инцидентов. Требуется проведение количественной оценки надежности СУЗ, причем отказ при выполнении функции аварийного останова – не более 10^{-5} , среднее время между отказами системы управления – не менее 105 ч, а среднее время ремонта – не более 1 ч.

НЕОТЛОЖНЫЕ ЗАДАЧИ ПО ГАРМОНИЗАЦИИ СТАНДАРТОВ

Анализ показал, что стандарты IEEE Std 603-1998 и IEEE Std 7-4.3.2-1998 можно рекомендовать как "ГОСТ Р IEEE" для адаптации в Российские системы НТД. Они являются более полными и непротиворечивыми для проектировщиков систем безопасности (и их программно-инструментальной части), чем существующие российские стандарты и ФНП.

Однако эта гармонизация не может быть осуществлена автоматически, без специальной экспертной оценки вновь разрабатываемых систем и стандартов безопасности. Возможны противоречия, разрешение которых потребует отступления от определенных устаревших требований и коррекции ряда документов ФНП.

Как отмечалось выше, к единственному документу ПК 45А первого (наиболее высокого) уровня иерархии МЭК 61513, недавно включенному в Российскую систему как ГОСТ Р МЭК 61513 [9], в 2020 г. был добавлен второй стандарт МЭК 63046 [10], который теперь также лежит в основе серии стандартов ПК 45А. Поэтому весьма актуальной становится и его адаптация как ГОСТ Р МЭК 63046. В результате анализа была составлена сводная таблица стандартов МЭК, посвященных АСУ ТП АЭС, в которой даны основные характеристики этих стандартов, но из-за большого объема она будет представлена в отдельной публикации.

БЛАГОДАРНОСТЬ

При работе над анализом стандартов авторы получили важные рекомендации и технические материалы от ряда ведущих Российских экспертов. Особую признательность и благодарность авторы выражают секретарю Технического комитета 45 МЭК, главному специалисту АО "ВНИИАЭС" С.А. Шумову и председателю секции АСУ НТС № 1 Госкорпорации "Росатом", руководителю направления АО "РАСУ" В.П. Сивоконю.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. IEEE Standard 603-1998 "Criteria for Safety Systems of Nuclear Power Plants. Description".
- 2. IEEE Standard 7-4.3.2-1993 "Criteria for Digital Computers in Nuclear Power Plant Safety Systems".
- 3. Nuclear Regulatory Commission 10 CFR 50: General Criteria for the Design of Nuclear Power Plants.
- 4. Federal norms and rules NP-001-15: General Provisions for Ensuring the Safety of Nuclear Power Plants.
- 5. Federal norms and rules NP-026-16: Requirements for Control Systems Important for the Safety of Nuclear Power Plants.
- 6. IEC 61226 ed. 4: 2020. "Nuclear Power Plants. Monitoring and Control Systems and Electrical Systems Important to Safety. Categorization of the Control and Management Function".
- 7. Federal Norms and Rules NP-087-07: Nuclear Safety Rules for Reactor Installations of Nuclear Power Plants.
- 8. GOST 26843–86 "Nuclear Power Reactors. General Requirements for the Control and Protection System".
- 9. IEC 61513 ed. 2: 2011, GOST R IEC 61513: 2020. "Nuclear Power Plants. Control and Management Systems Important to Safety. General Requirements".
- IEC 63046: 2020. "Nuclear Power Plants. Control, Management and Electrical Equipment Important to Safety. General Requirements for Electrical Systems".

Systems of Regulatory Documents Governing the Development and Implementation of Digital Monitoring and Control Systems for Nuclear Plants

I. D. Rakitin^{1,} * and S. B. Chebyshov¹

¹JSC "Specialized Research Institute of Instrument Engineering", Moscow, 123060 Russia *e-mail: igor.rakitin@gmail.com Received July 11, 2022; revised July 11, 2022; accepted July 18, 2022

Abstract—Compliance analysis of domestic and main international systems of standards, scientific and technical documentation and manuals on digital control and monitoring systems of nuclear power plants (NPP), including documents of the International Electrotechnical Commission (IEC), the International Atomic En-

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

РАКИТИН, ЧЕБЫШОВ

ergy Agency (IAEA), the Nuclear Regulatory Commission (NRC) USA, the Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE) USA, etc. Recommendations are formulated on the nomenclature and content of normative and methodological standardization documents developed in the Russian nuclear industry, as well as on their harmonization with international systems and documents.

Keywords: standards systems, International Electrotechnical Commission (IEC), International Atomic Energy Agency (IAEA), regulatory and technical documentation, development, digital monitoring and control systems, nuclear power plants (NPPs)

УДК 621.039.4

ПОСТРОЕНИЕ ИЗМЕРИТЕЛЬНЫХ КАНАЛОВ АВТОМАТИЗИРОВАННЫХ СИСТЕМ РАДИАЦИОННОГО КОНТРОЛЯ АЭС БОЛЬШОЙ МОЩНОСТИ С УЧЕТОМ ПРОЕКТНЫХ ТРЕБОВАНИЙ ОБЪЕКТОВ КОНТРОЛЯ

© 2022 г. Е. М. Ветошкин^{*a*}, А. С. Гордеев^{*a*}, *, А. А. Иванов^{*a*}, А. В. Калин^{*a*}, Р. А. Насибуллин^{*a*}, С. Б. Чебышов^{*a*}, И. И. Черкашин^{*a*}

^аАО "Специализированный научно-исследовательский институт приборостроения", Москва, 123060 Россия

**E-mail: AnSerGordeev@sniip.ru* Поступила в редакцию 11.07.2022 г. После доработки 11.07.2022 г. Принята к публикации 18.07.2022 г.

Представлен обзор по номенклатуре и основным техническим требованиям, предъявляемым к программно-техническим средствам радиационного контроля для построения стационарных измерительных каналов, применяемых в составе информационно-измерительных систем на АЭС большой мощности завершенных и реализуемых в настоящее время проектов российского дизайна. Выполнено сравнение эксплуатационных и метрологических характеристик представленного на рынке оборудования автоматизированных систем радиационного контроля в сопоставлении с проектными требованиями. Сделаны обобщающие выводы о перспективах развития направления радиационного контроля с учетом дальнейшего совершенствования аппаратуры и опыта создания и ввода в действие АСУТП АЭС при их сооружении и модернизации.

Ключевые слова: радиационный контроль, радиационный мониторинг, автоматизированные системы радиационного контроля, радиационная безопасность, устройства детектирования, блоки детектирования

DOI: 10.56304/S207956292203054X

введение

Настоящий период развития атомной энергетики и промышленности во всем мире характеризуется интенсивно проводимыми работами по проектированию, сооружению и продлению сроков эксплуатации АЭС большой мощности. При этом безусловный приоритет на этапе выбора и реализации организационных и технических решений отдается вопросам безопасности объектов использования атомной энергии, включая все возможные аспекты ядерной и радиационной безопасности.

Основными инструментами, обеспечивающими радиационную безопасность АЭС, являются автоматизированные системы радиационного контроля (АСРК), предназначенные для получения, сбора, обработки, регистрации и представления информации о параметрах, характеризующих радиационное состояние энергоблоков и сооружений АЭС и окружающей среды при всех режимах работы, включая проектные аварии, а также о состоянии объектов при выводе их из эксплуатации.

АСРК является одной из подсистем АСУТП АЭС и на нее распространяются все требования к

метрологическому обеспечению, предъявляемые к оборудованию важному для безопасности. При этом имеются специфические особенности, характерные для АСРК: широкие диапазоны измерений (до 15 десятичных порядков) с нормированной погрешностью во всем диапазоне: необходимость использования источников ионизирующих излучений (ИИИ) для проведения метрологического обслуживания (поверки); режимы функционирования оборудования связаны с отбором проб радиоактивных сред и расположением измерительных каналов в зонах с контролируемым доступом персонала; АСРК не вырабатывает управляющих сигналов, являясь информационно-измерительной системой; оборудование АСРК не подлежит калибровке. Ряд требований, предъявляемых к АСУТП, не применим к элементам АСРК, чувствительным к ионизирующему излучению (например, по радиационной устойчивости).

ОБЗОР ТРЕБОВАНИЙ К ИЗМЕРИТЕЛЬНЫМ КАНАЛАМ

В состав современных АСРК АЭС большой мощности входят измерительные каналы (ИК) для измерения следующих физических величин:

Гаолица I. Значения ВВФ					
Фактор	[1]	[2]	[3]		
Сейсмостойкость	II	IIиII	ІиII	Π	
Помехоустойчивость по ГОСТ 32137	III по ГОСТ Р 50746-200	IV	III, IV	III, I	
Климатическое исполнение	УХЛ	Т	Т	УХЛ	
Тип атмосферы	II	IV	III	II	

Нет требований

Нет требований

Таблица 1. Значения ВВФ

Коррозионные агенты, не более,

Внешний гамма-фон

амбиентного эквивалента мошность лозы (МАЭД) и мощность поглощенной дозы (МПД) гамма-излучения (включая значения при максимальной проектной аварии), объемная активность (OA): инертных радиоактивных газов (ИРГ), радиоактивных аэрозолей, йодов, жидкости (в дистанционном, проточном и погружном варианте геометрии), технологических сред, радиоактивного азота в "остром паре" трубопроводов, радиоактивного натрия в солевом остатке, радионуклидов в теплоносителе первого контура и в выбросах, индивидуальный эквивалент дозы рентгеновского. гамма-, бета- и нейтронного излучений, активность радионуклидов в органах и теле человека, а также плотность потока бета-частиц с поверхности и параметры воздушного потока. В зависимости от проектной конфигурации АЭС и коммерческих условий поставки, в состав АСРК могут включаться: аппаратура радиационного контроля течи теплоносителя из первого контура во второй контур (АРКТ), программно-технические средства для периодического и эпизодического контроля (ПЭК), а также блоки и устройства детектирования для радиационного контроля окружающей среды, перемещений персонала и транспорта, оборудование контроля при обращении с радиоактивными отходами.

Приведенный перечень ИК подсистем АСРК радиационного контроля помещений, радиационного технологического контроля, индивидуального дозиметрического контроля и радиационного контроля загрязнений является исчерпывающим и соответствует конфигурации АСРК для проектов АЭС-2006, ВВЭР-ТОИ и перспективных проектов.

Имеются существенные предпосылки для оптимизации комплекса требований к объему радиационного контроля для обеспечения унификации и типизации ИК в рамках реализации перспективных проектов АЭС.

При интеграции АСРК в состав АСУТП АЭС учитываются специфические особенности реализации ИК, в том числе в процессе определения требований к их эксплуатационным и метрологическим характеристикам. Требования к устойчивости оборудования ИК АСРК к внешним воздействующим факторам (ВВФ) во многом определяются географией размещения АЭС на территории России и за рубежом, включая такие страны как Турция (АЭС "Аккую"), Бангладеш (АЭС "Руппур"), Индия (АЭС "Куданкулам"), Египет (АЭС "Эль-Дабаа") и др.

1 Гр/ч

Хлориды: 0.267;

сульфаты: 0.022

Хлориды: 0.267;

сульфаты: 0.022

Нет требований

[4]

IV

Нет требова-

10⁻³ Гр/ч

ний

Сравнение требований к значениям ВВФ для различных проектов сооружения АЭС в России и за рубежом приведено в табл. 1. Очевидно, что для достижения технической конкурентоспособности АСРК за счет унификации программно-технических средств оборудование ИК должно удовлетворять наиболее жестким условиям эксплуатации.

Отмечается тенденция, когда в основу проектных требований к метрологическим характеристикам ИК АСРК ложатся параметры конкретных производителей оборудования, соответствующие физические расчеты радиационных величин зачастую не проводятся, а производители оборудования таким образом обеспечивают свои конкурентные преимущества на российском сегменте рынка. В ряде случаев проектные требования по диапазону и точности измерений превышают потребность, обусловленную параметрами технологических процессов, то есть являются избыточными. Избыточность требований к метрологическим характеристикам отдельных измерительных каналов ухудшает эксплуатационные возможности АСРК в целом, требует дополнительных затрат на приобретение оборудования (включая поверочные установки, эталоны, образцовые ИИИ) в существенно ограничивает типизацию и унификацию технических решений как в пределах одного проекта, так и между проектами-аналогами.

С учетом вышеизложенного, на основе сравнения требований к диапазонам и точности измерений, содержащихся в частных технических заданиях на разработку АСРК для проектов современных АЭС поколения 3+, например в [1–4], сопоставления уровня конкурентных аналогов, представленных на рынке АСРК, также анализа содержания руководящего документа Акционерного общества "Концерн Росэнергоатом" по объ-

 $M\Gamma/M^3$

Таблица 2. Перечень типовых ИК АСРК

Наименование контролируемых параметров	Диапазоны измерений (диапазон регистрируемых энергий)	Пределы основной относительной погрешности, %
МАЭД гамма-излучения	От 1.0 · 10 ⁻⁷ до 1.0 · 10 ² , Зв/ч (от 0.05 до 8.0, МэВ)	±20
МПД гамма-излучения	От 1.0 · 10 ⁻⁷ до 1.0 · 10 ² , Гр/ч (от 0.06 до 3.0, МэВ)	±25
МПД гамма-излучения (для аварий- ных условий)	От 3.0 · 10 ⁻³ до 1.0 · 10 ⁵ , Гр/ч (от 0.06 до 3.0, МэВ)	±30
OA I ¹³¹	От 3.7 до 3.7 · 10 ⁶ , Бк/м ³ (в спектре излучения I ¹³¹)	±30
ОА радиоактивных аэрозолей	По альфа-излучению: от $1.0 \cdot 10^{-2}$ до $2.0 \cdot 10^5$, Бк/м ³ (от 3.0 до 8.0 , МэВ) по бета-излучению: от $1.0 \cdot 10^{-1}$ до $1.0 \cdot 10^6$, Бк/м ³ (от 3.0 до 8.0 , МэВ)	±30
ОА ИРГ	От 1.0 · 10 ⁴ до 1.0 · 10 ¹³ , Бк/м ³ (от 0.06 до 3.0, МэВ)	±20
ОА жидкости (бесконтактный вари- ант)	От 1.5 · 10 ³ до 3.7 · 10 ⁸ , Бк/м ³ (от 0,05 до 7,2, МэВ)	±20
ОА жидкости (проточный вариант)	От 2.5 · 10 ³ до 3.7 · 10 ⁸ , Бк/м ³ (от 0.1 до 3.0, МэВ)	±30
ОА жидкости (погружной вариант)	От 3.7 · 10 ³ до 4.0 · 10 ⁸ , Бк/м ³ (от 0.15 до 1.5, МэВ)	±20
OA N ¹⁶	От 1.5 · 10 ³ до 3.7 · 10 ⁸ , Бк/м ³ (от 0.05 до 7.2, МэВ)	±30
OA Na ²⁴ в солевом остатке	От 5.0 · 10 ³ до 1.0 · 10 ¹⁰ , Бк/м ³ (в спектре излучения Na ²⁴)	±30
Индивидуальный эквивалент дозы	От 5.0 · 10 ⁻⁵ до 1.0 · 10 ¹ , Зв (рентгеновское и гамма-излучение от 0.015 до 7.0, МэВ)	±15
Плотность потока бета-частиц с поверхности	От 1.0 · 10 ⁰ до 1.5 · 10 ⁴ , част. см ⁻² мин ⁻¹ (от 0.1 до 2.5, МэВ)	±30

ему радиационного контроля на АЭС [5], в табл. 2 приведен перечень типовых ИК АСРК, по метрологическим характеристикам удовлетворяющим потребностям перспективных проектов АЭС.

Следует отметить, что в рамках процедуры утверждения типа средства измерений в общем случае проводят испытания для целей утверждения типа ИК. В состав ИК входят: непосредственно оборудование нижнего уровня (блоки и устройства детектирования) утверждённого типа, блоки и устройства обработки информации нижнего уровня (как правило, также утвержденного типа) и технические средства верхнего уровня для отображения информации с использованием человекомашинных интерфейсов. Оборудование функционально законченных ИК, следуя цели повышения эргономических качеств АСРК, размещается на стендах радиационного контроля, имеющих в своем составе запорно-регулирующую арматуру, средства отбора проб, устройства локального управления работой ИК, блоки коммутации, питания и сигнализации, а также измерители физических параметров (расходомеры и пр.).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В заключении необходимо отметить возрастающий объем и значимость параметров, контролируемых при помощи спектрометров из состава АСРК. Внедрение методов спектрометрического анализа в состав устройств детектирования ОА ИРГ и жидкостей, помимо измерения парциальных ОА реперных радионуклидов, позволяет повысить качество измерительной информации посредством учета удельного состава контролируемых сред при расчете суммарной ОА.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. Novovoronezh NPP-2. Automated Radiation Monitoring System Technical Specification. 590 85 090.33533.033-F.ASRK.ChTZ.M.
- 2. Ruppur NPP. Units 1, 2. Automated Radiation Monitoring System Technical Specification. RPR.1022.10JA.CFL.AT.EC0001.
- Akkuyu NPP. Units 1, 2, 3, 4. Automated Radiation Monitoring System Technical Specification. AKU.1022.0.0.AK.BD0023.
- 4. Kursk NPP-2. Units 1, 2. I, and C. Automated Radiation Monitoring System Technical Specification. KUR.1022.UJA.CFM.EEC0023.
- 5. Radiation Monitoring Systems for Nuclear Power Plants. General Requirements. STO 1.1.1.04.001.1384-2017.

Construction of the Measuring Channels for the High Power NPPs Automated Radiation Monitoring Systems Subject to the Monitoring Objects Design Requirements

E. M. Vetoshkin¹, A. S. Gordeev^{1, *}, A. A. Ivanov¹, A. V. Kalin¹,
R. A. Nasibullin¹, S. B. Chebyshov¹, and I. I. Cherkashin¹

¹JSC "Specialized Research Institute of Instrument Engineering", Moscow, 123060 Russia *e-mail: AnSerGordeev@sniip.ru Received July 11, 2022; revised July 11, 2022; accepted July 18, 2022

Abstract—The paper presents the overview of the list and main technical requirements of the radiation monitoring hardware and the software for the stationary measuring channels construction that are used as part of the information measuring systems for the high power NPPs made by Russian design which are in operation and under construction. The comparison of the working and the metrological parameters of the automated radiation monitoring systems equipment up to the market considering the design requirements has been performed. The common conclusions of the development trends for the radiation monitoring direction according to the future equipment improvement and the references of Instruments and Control for NPPs creation and installation during their construction and modernization have been made.

Keywords: radiation monitoring, automated radiation monitoring systems, radiation safety, detecting devices, detection units

——— РАДИАЦИОННАЯ СТОЙКОСТЬ МАТЕРИАЛОВ И АППАРАТУРЫ ———

УДК 621.039.634:621.039.531:620.187:621.384.6

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ИОНАМИ Fe НА НАНОСТРУКТУРУ ДИСПЕРСНО-УПРОЧНЕННЫХ ОКСИДАМИ СТАЛЕЙ ПРИ 500°С

© 2022 г. С. В. Рогожкин^{а, *}, А. В. Клауз^а, А. А. Богачев^а, А. А. Хомич^а, П. А. Федин^а, О. А. Разницын^а

^аНациональный исследовательский центр "Курчатовский институт", Москва, 123182 Россия *E-mail: Sergey.Rogozhkin@itep.ru Поступила в редакцию 11.11.2022 г. После доработки 14.11.2022 г.

Принята к публикации 14.11.2022 г.

В данной работе исследовалась радиационная стабильность ДУО сталей с разными системами легирования под воздействием облучения ионами железа до дозы 100 сна при 500°С методом просвечивающей электронной микроскопии. Хотя размеры оксидных включений под облучением практически не изменились, наблюдалось сильное уменьшение их объемной плотности в сталях 10Сr ODS и KP-3 ODS, в то время как в Eurofer ODS объемная плотность оксидов не изменилась. Оксиды типа Y–Ti–O и Y–Al–O в сталях 10Cr ODS и KP-3 ODS показали более низкую радиационную стойкость в сравнении с оксидами Y–O в стали Eurofer ODS.

Ключевые слова: оксиды, просвечивающая электронная микроскопия, дисперсно-упрочненная оксидами сталь, облучение, ионы

DOI: 10.56304/S2079562922030411

ВВЕДЕНИЕ

Дисперсно-упрочненные оксидами (ДУО) сплавы и стали разрабатываются как жаропрочные материалы для применения в различных экстремальных условиях. В перспективных ядерных энергетических установках эти материалы должны выдерживать температуры до 700°С и дозы радиационной нагрузки до 200 сна [1, 2]. Продвинутые механические свойства ЛУО сталей сушественно зависят от оксидных нано-включений (частиц и кластеров), равномерно распределенных в матрице [3, 4]. В настоящее время изучению стабильности наноструктуры ДУО сталей уделяется пристальное внимание [5, 6]. В работах показано, что облучение при комнатной температуре может приводить к растворению крупных (>10 нм) оксидов, зарождению кластеров, обогащенных Ү, О и V или Ti, и небольших (<5 нм) оксидных включений [7]. Увеличение температуры облучения до 300°C, и выше, приводит к стабилизации оксидных включений в большинстве случаев (см., обзор [5]). Хотя общие механизмы влияния облучения на оксидные выделения ясны, полное понимание влияния облучения на поведение ДУО сталей все еще не достигнуто.

Следует отметить, что небольшое количество некоторых легирующих элементов (Ti, Zr, V, Al...) заметно уменьшает размер оксидных частиц и увеличивает их плотность в ДУО сталях (см., например, [8]). Эти структурные изменения обеспечивают значительное улучшение длительной прочности ДУО материалов при высоких температурах по сравнению с неупрочненными сталями. Однако неясно, насколько эти изменения наноструктуры важны для их радиационной стойкости.

В настоящее время в национальных и/или исследовательских программах разработан широкий ассортимент ДУО сталей [9-12]. В настоящей работе изучались три ДУО стали с различными системами легирования, которые были ранее исследованы в исходном состоянии и после облучения до максимальной дозы 30 сна [13]. Радиационная нагрузка моделировалась облучением тяжелыми ионами до дозы радиационных повреждений при 100 сна и температуре облучения 500°C, что соответствует промежуточной области температурного интервала эксплуатации ДУО сталей в реакторах на быстрых нейтронах. Влияние облучения на структурно-фазовое состояние сталей изучалось с помощью просвечивающей электронной микроскопии (ПЭМ).

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

В настоящей работе продолжилось систематическое исследование трех ДУО сталей, исследованных ранее в работе [13]: Eurofer ODS, 10Cr ODS и KP-3 ODS, химический состав которых представлен в табл. 1. Эти стали, полученные путем механического легирования металличе-

	Fe	Мо	Al	Ni	Mn	Cr	W	Y	0	Ti	V	С	Ν	Ar	Si
Eurofer ODS	88.08	_	_	0.02	0.39	9.81	0.34	0.13	0.34	_	0.22	0.40	0.21	_	0.06
10Cr ODS	86.90	0.57	_	_	0.50	10.64	_	0.17	0.17	0.29	0.11	0.60	0.02	0.01	_
KP-3 ODS	78.29	_	6.40	_	—	13.82	0.55	0.16	0.37	0.18	_	0.21	_	_	-

Таблица 1. Номинальный химический состав исследуемых ДУО сталей, ат. %

ских порошков и порошка $Y_2O_{3,}$ отличаются по основным элементам легирования: 9Cr–V (Eurofer ODS), 10Cr–V–Ti (10Cr ODS), 13Cr–Ti–Al (KP-3 ODS). Содержание иттрия в исследуемых сталях находится в диапазоне 0.13–0.17 ат. %, в то время как содержание кислорода колеблется в широких пределах: от 0.17 в 10Cr ODS до 0.37 ат. % в стали KP-3 ODS. Исследуемые материалы также имели различные финишные термомеханические обработки.

Сталь KP-3 ODS, из Института перспективных источников энергии Киотского университета (Япония), заключалась в капсулу из мягкой стали, и дегазировалась вакууме 10⁻³ торр при 400°С в течение 3 ч. Горячая экструзия при 1150°С осуществлялась для придания формы в виде стержня диаметром 25 мм с последующим отжигом при 1150°С в течение 1 ч и охлаждением на воздухе. Сталь 10Cr ODS была изготовлена в Корейском исследовательском институте атомной энергии (Республика Корея). При ее приготовлении финишная термомеханическая обработка включала горячее изостатическое прессование при 1150°С в течение 4 ч при 100 МПа и последующую горячую прокатку при 1100°C, нормализацию при 1050°C в течение 1 ч с охлаждением на воздухе и отпуск при 780°С в течение 1 ч с охлаждением на воздухе. Сталь Eurofer ODS из Института прикладных материалов и физики прикладных материалов Института технологий Карлсруэ (Германия) была нормализована при 1100°С в течение 30 мин с закалкой в воде с последующим отпуском при 750°С в течение 2 ч с охлаждением на воздухе.

В настоящей работе для достижения необходимых доз радиационного повреждения использовался пучок ионов Fe²⁺, ускоренный до 5.6 МэВ [13]. Для микроскопических исследований была выбрана область на глубине 1 мкм, удаленная как от поверхности образца, так и от пика внедренных ионов на глубине ~1.6 мкм (см., результаты SRIM расчетов на рис. 1). Количество генерируемых дефектов на глубине 1 мкм пучком ионов 5.6 МэВ Fe²⁺ при фюленсе $1.7 \cdot 10^{21}$ м⁻² соответсвует дозе повреждения 100 сна. Для облучения были вырезаны диски диаметром 3 мм и толщиной 0.3 мм. Эти образцы были механически отполированы до толщины 200 мкм. Остаточный наклеп от механического утонения удалялся с облучаемой поверхности с помощью электрохимического полирования на установке TenuPol-5 в течении 30 с в 10%-ом растворе хлорной кислоты в этаноле. Напряжение, подаваемое на образец, подбиралось по кривой зависимости плотности тока. Шероховатость поверхности образца контролировалась с помощью атомно-силовой микроскопии до и после облучения, и она составляла менее 20 нм для всех образцов.

Анализ химического и фазового состава сталей проводился с помощью ПЭМ, электронной дифракции (ЭД) и сканирующей просвечивающей электронной микроскопии (СПЭМ). Для получения Z-контрастных микрофотографий использовался микроскоп Titan 80-300 S/TEM (Thermo Fisher Scientific, США) с ускоряющим напряжением 300 кВ, оснащенный кольцевым высокоугловым темнопольным детектором (HAADF, Fischione). Качественный и количественный химический анализ образцов проводился методом энергодисперсионной рентгеновской спектроскопии (EDXS).

Образцы для микроскопических исследований методами ПЭМ были изготовлены методом фокусированного ионного пучка (ФИП) ионов Ga⁺ в растровом электронно-ионном микроскопе HELIOS NanoLab 600 (FEI, Голландия) при ускоряющем напряжении 5–30 кВ. Для уменьшения толщины нарушенного аморфизированного слоя, вследствие взаимодействия с ионным пучком, производилось дополнительное утонение при ускоряющем напряжении 2 кВ.

ИССЛЕДОВАНИЕ СТРУКУТРЫ ДУО СТАЛЕЙ

Микроструктура исследуемых ДУО сталей состоит из типичных ферритных зерен размером 0.3-2 мкм в Eurofer ODS, 0.2-1.5 мкм в 10Cr ODS и 0.5-2 мкм в KP-3 ODS. Высокая плотность мелких оксидов была обнаружена во всех исследованных ДУО сталях. Средние размеры оксидов составляли 2-10 нм в Eurofer ODS (тип Y₂O₃ и (Y_{1.8}Mn_{0.2})O₃), 1-6 нм в 10Cr ODS (Y₂Ti₂O₇, или Y₂TiO₅) и 2-5 нм в KP-3 ODS (Y₄Al₂O₉, YAlO₃, Y₃Al₅O₁₂). Исходное состояние рассматриваемых ДУО сталей подробно исследовано в работе [13].



Рис. 1. Профили повреждения (сплошная линия) и имплантации ионов (пунктирная линия) в образце из чистого железа, облученном пучком ионов Fe с энергией 5.6 МэВ, рассчитанные в пакете SRIM2008. Расчеты приведены для флюенса ионов $1.7 \cdot 10^{21}$ м⁻² и пороговой энергии смещения 40 эВ.

После облучения до 100 сна при 500°С во всех сталях обнаружены мелкие оксиды в диапазоне 2–8 нм. В стали Eurofer ODS это оксиды типа Y–O в диапазоне 4–8 нм, в 10Cr ODS оксиды типа Y–Ti–O в диапазоне 2–4 нм, и в KP-3 ODS это оксиды типа Y–Al–O также в диапазоне 2–4 нм. Подробное описание размеров и объемных плотностей обнаруженных оксидов представлено в табл. 2.

На рис. 2–4 представлены ПЭМ изображения микроструктуры облученных ДУО сталей, полученные в светлопольном и темнопольном режимах.

На рис. 5–7 представлены результаты элементного картирования исследованных ДУО сталей после облучения. В оксидах стали Eurofer ODS наблюдаются выделения Y и по O, а в матрице наблюдается распад твердого раствора по Cr. В оксидах стали 10Cr ODS наблюдаются выделения Y и Ti. В стали KP-3 ODS в оксидах видны выделения Y, а также существенный распад твердого раствора матрицы по Cr.

На рис. 8 представлено элементное картирование выделенной оксидной частицы в стали Eurofer ODS. На снимке отчетливо наблюдается разбиение оксида облучением с образованием областей, обогащенных Y и O.

СРАВНЕНИЕ ИСХОДНЫХ И ОБЛУЧЕННЫХ СТАЛЕЙ

В табл. 2 было представлено сравнение характеристик оксидов в облученном состоянии (100 сна при 500°С) с характеристиками исходного состояния ДУО сталей. Во всех исследованных ДУО сталях средние размеры оксидов сохранились

материал	система	типы оксидов в исходном состоянии	средний ра	змер оксидов, нм	объемная плотность оксидов , $10^{22} \mathrm{m}^{-3}$		
	легирования		исходное	облученное до 100 сна	исходное	облученное до 100 сна	
Eurofer ODS	9Cr–V	Y-0	6 ± 2	4 ± 1	4 ± 1	3 ± 1	
10Cr ODS	10Cr-V-Ti	Y-Ti-O	3 ± 1	4 ± 1	13 ± 3	2 ± 3	
KP-3 ODS	13Cr-Ti-Al	Y–Al–O	3 ± 1	4 ± 1	9 ± 2	3 ± 2	

Таблица 2. Характерные размеры и объемная плотность оксидных включений, обнаруженных с помощью ПЭМ в ДУО сталях после облучения Fe²⁺ с энергией 5.6 МэВ при 500°С до 100 сна и в исходном состоянии

ПЭМ анализ



Рис. 2. ПЭМ изображение микроструктуры Eurofer ODS: (а) светлопольное и (б) темнопольное изображение.



Рис. 3. ПЭМ изображение микроструктуры стали 10Cr ODS: (а) светлопольное и (б) темнопольное изображение.

в пределах погрешности. При этом объемная плотность оксидов сохранилась (в пределах погрешности) только в Eurofer ODS, а в сталях 10Cr ODS и KP-3 ODS наблюдается существенное уменьшение их объемной плотности (в ~4 и в ~3 раза соответственно).

Результаты исследования перестройки оксидных включений при облучении ДУО сталей представлены на рис. 9–11. Исследование методами ПЭМ облученной Eurofer ODS выявило растворение крупных оксидов (более 10 нм) и уменьшения доли средних оксидов (более 4 нм), при этом увеличение доли мелких оксидов приводит только к незначительному изменению среднего размера и сохранению объемной плотности. В облученной 10Cr ODS происходит уменьшение доли мелких оксидов (менее 3 нм) и увеличение доли средних оксидов (более 4 нм), при этом средний размер оксидов сохраняется в пределах погрешности. В облученной KP-3 ODS происходит небольшое уменьшение доли мелких оксидов (менее 4 нм) и увеличение доли мелких оксидов (более 4 нм). Также облучение привило к уменьшению объемной плотности оксидов во всем размерном диапазоне в сталях 10Cr ODS и KP-3 ODS, что отчетливо видно на рис. 9–10.



Рис. 4. ПЭМ изображение микроструктуры стали КР-3 ODS: (а) светлопольное и (б) темнопольное изображение.



Рис. 5. Элементное картирование оксидных частиц в стали Eurofer ODS.

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022



Рис. 6. Элементное картирование оксидных частиц в стали 10Cr ODS.



Рис. 7. Элементное картирование оксидных частиц в стали KP-3 ODS.

ОБСУЖДЕНИЕ

В работе [12] приводились исследование влияния облучения ДУО сталей Eurofer ODS, 10Cr ODS и KP-3 ODS до максимальной дозы 30 сна при 350°С. Увеличение дозы облучения сопровождалось слабым изменением размера оксидных частиц и уменьшением их объемной плотности в сталях 10Cr ODS и KP-3 ODS, с 13 · 10²² до $4 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ и с $9 \cdot 10^{22}$ до $5 \cdot 10^{22} \text{ м}^{-3}$ соответственно. Проведенное в настоящей работе исследование влияния облучения до дозы 100 сна при 500°С на наноструткуруру материала подтверждает закономерность дальнейшего уменьшения объемной плотности оксидных частиц при увеличении дозы повреждения. Так объемная плотность оксидов уменьшилась до 2 · 10²² и 3 · 10²² м⁻³ в сталях 10Сг ODS и KP-3 ODS соответственно. При этом оксидные частицы в стали Eurofer ODS фактически не претерпевали изменения в объемной плотности как при облучении до 30 сна, так и при облучении до 100 сна.

При облучении до 100 сна в сталях наблюдается перераспределение оксидных частиц по размерам, особенно этот эффект выражен в стали Eurofer ODS, где сильно увеличивается доля малоразмерных (<5 нм) частиц, а доля частиц большего размера (>5 нм) уменьшается. Данное изменение возможно обусловлено ростом наноразмерных кластеров и преобразованием их в оксидные включения, которое отмечалось в работе [15] при исследовании данных ДУО сталей при облучении при 350°С. Отметим, что в исходном состоянии исследованных сталей была обнаружена высокая плотность наноразмерных кластеров [13], которые могут выступать в качестве зародышей для новой фракции оксидов. Исследование методом атомно-зондовой томографии позволит подтвердить вышеописанный эффект преобразование кластеров в оксидные частицы в случае облучения при высоких температурах ~500°С до дозы 100 сна.

ВЛИЯНИЕ ОБЛУЧЕНИЯ ИОНАМИ Fe



Рис. 8. Элементное картирование оксидной частицы в стали Eurofer ODS.



Рис. 9. Распределение оксидов по размеру в стали Eurofer ODS в исходном состоянии и после облучения до дозы 100 сна при 500° С, нормированное на объемную плотность оксидов.

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022



Рис. 10. Распределение оксидов по размеру в стали 10Cr ODS в исходном состоянии и после облучения до дозы 100 сна при 500°C, нормированное на объемную плотность оксидов.



Рис. 11. Распределение оксидов по размеру в стали KP-3 ODS в исходном состоянии и после облучения до дозы 100 сна при 500°С, нормированное на объемную плотность оксидов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведено исследование радиационной стойкости дисперсно-упрочненных оксидами сталей Eurofer ODS, 10Cr ODS и KP-3 ODS с различными системами легирования, с использованием ускоренного набора дозы радиационных повреждений облучения на укорителе тяжелых ионов. Материалы были облучены при температуре 500°С ионами Fe²⁺ до флюенса 1.7 · 10²¹ м⁻², что на глубине проводимого микроскопического анализа ~1 мкм соответствует повреждающей дозе 100 сна.

Исследование микроструктуры методом просвечивающей электронной микроскопии ДУО сталей после облучения до 100 сна обнаружило: в Eurofer ODS — оксидные включения размерами ~4 нм и объемной плотностью ~3 \cdot 10²² м⁻³, в стали 10Cr ODS — оксиды со средним размером 4 нм и объемной плотностью 2 \cdot 10²² м⁻³, а в стали KP-3 ODS — оксиды размерами 4 нм и плотностью 3 \cdot 10²² м⁻³ соответственно.

При сравнении с исходным состоянием, средние размеры оксидных частиц сохраняется в пределах погрешности во всех сталях, в частности за счет перераспределения размеров оксидов в область меньших размеров (в Eurofer ODS) и в область больших размеров (в 10Cr ODS и KP-3 ODS). При этом объемная плотность оксидов сохранилась только в Eurofer ODS, а в двух других сталях сильно уменьшилась: в 10Cr ODS с (13 до 2) $\cdot 10^{22}$ м⁻³ и в KP-3 ODS с (9 до 3) $\cdot 10^{22}$ м⁻³.

Полученные результаты указывают на недостаточную радиационную стабильность оксидов в сталях 10Cr ODS и KP-3 ODS, содержащих Ti и Al соответственно. Необходимо отметить, что в исходном состоянии сталь Eurofer ODS имела наименьшую плотность оксидов, а после облучения до дозы 100 сна при 500°С имеет наибольшую объемную плотность и следственно наиболее стабильный показатель жаропрочности из трех исследованных сталей.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарят доктора П. Владимирова из Института технологий Карлсруэ (Германия), профессора А. Кимуру из Университета Киото (Япония) и доктора Т.К. Ким (Республика Корея) из Корейского исследовательского института атомной энергии за предоставленные образцы ДУО сталей.

ФИНАНСИРОВАНИЕ

Исследование выполнено при поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 22-29-01279). Облучение образцов и подготовка образцов выполнены на оборудовании Центра коллективного пользования КАМИКС (http://kamiks.itep.ru/) НИЦ "Курчатовский институт" – ККТЭФ. Приготовление образцов методами фокусированных ионных пучков и анализ методами просвечивающей электронной микроскопии выполнены на оборудовании ресурсного "Структурная диагностика материалов" ФНИЦ "Кристаллография и фотоника" РАН (https://kif.ras.ru/ckp/contacts/).

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ

Авторы заявляют, что не имеют конфликта интересов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

 Yvon P., Carré F. // J. Nucl. Mater. 2009. V. 385 (2). P. 217.

https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.11.026

- Klueh R.L., Shingledecker J.P., Swindeman R.W., Hoelzer D.T. // J. Nucl. Mater. 2005. V. 341 (2–3). P. 103. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2005.01.017
- Ukai S., Okuda T., Fujiwara M., Kobayashi T., Mizuta S., Nakashima H. // J. Nucl. Sci. Technol. 2002. V. 39 (8). P. 872. https://doi.org/10.1080/18811248.2002.9715271
- Hoelzer D.T., Bentley J., Sokolov M.A., Miller M.K., Odette G.R., Alinger M.J. // J. Nucl. Mater. 2007. V. 367– 370. Part A. P. 166. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2007.03.151
- Wharry J.P., Swenson M.J., Yano K.H. // J. Nucl. Mater. 2017. V. 486. P. 11. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.01.009
- Liu X., Miao Y., Wu Y., Maloy S.A., Stubbins J.F. // Scr. Mater. 2017. V. 138. P. 57. https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2017.05.023
- Rogozhkin S., Bogachev A., Korchuganova O., Nikitin A., Orlov N., Aleev A., Zaluzhnyi A., Kozodaev M., Kulevoy T., Chalykh B., Lindau R., Möslang A., Vladimirov P., Klimenkov M., Heilmaier M., Wagner J., Seils S. // Nucl. Mater. Energy. 2016. V. 9. P. 66. https://doi.org/10.1016/j.nme.2016.06.011
- Ukai S., Fujiwara M. // J. Nucl. Mater. 2002. V. 307– 311. Part 1. P. 749.
- https://doi.org/10.1016/S0022-3115(02)01043-7
- De Carlan Y., Bechade J., Dubuisson P., Seran J., Billot P., Bougault A., Cozzika T., Doriot S., Hamon D., Henry J., Ratti M., Lochet N., Nunes D., Olier P., Leblond T., Mathon M.H. // J. Nucl. Mater. 2009. V. 386– 388. P. 430. https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2008.12.156
- Mateus R., Carvalho P.A., Nunes D., Alves L.C., Franco N., Corrected L.P., Alves F. // Evicen Eng. Dec. 2011 V 86 (0)
- *Correia J.B., Alves E.* // Fusion Eng. Des. 2011. V. 86 (9–11). P. 2386. https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2011.01.011
- 11. Jeong Y.H., Kim W.J., Kim D.J., Jang J., Kang S.H., Chun Y.-B., Kim T.K. // Proc. Eng. 2014. V. 86. P. 1. https://doi.org/10.1016/j.proeng.2014.11.004
- Kimura A., Cho H.-S., Toda N., Kasada R., Yutani K., Kishimoto H., Iwata N., Ukai S., Fujiwara M. // J. Nucl. Sci. Technol. 2007. V. 44 (3). P. 323. https://doi.org/10.1080/18811248.2007.9711289
- Рогожкин С.В., Хомич А.А., Богачев А.А., Никитин А.А., Хорошилов В.В, Кулевой Т.В., Федин П.А., Пресняков М.Ю., Лукьянчук А.А., Разницын О.А.,

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

Шутов А.С., Залужный А.Г., Васильев А.Л. // Ядерная физика и инжиниринг. 2020. Т. 11 (2). С. 67.

https://doi.org/10.1134/S2079562920010133 [Rogozhkin S.V., Khomich A.A., Bogachev A.A., Nikitin A.A., Khoroshilov V.V., Kulevoy T.V., Fedin P.A., Presniakov M.Yu., Lukyanchuk A.A., Raznitsyn O.A., Shutov A.S., Zaluzhniy A.G., Vasilev A.L. // Phys. At. Nucl. 2020. V. 83 (11). P. 1519.

https://doi.org/10.1134/S10637788201002081.

14. Рогожкин С.В., Никитин А.А., Искандаров Н.А., Хорошилов В.В., Богачев А.А., Лукьянчук А.А., Разницын О.А., Шутов А.С., Федин П.А., Куибеда Р.П., Кулевой Т.В., Васильев А.Л., Пресняков М.Ю., Кравчук К.С., Усеинов А.С. // Ядерная физика и инжиниринг. 2018. Т. 9 (3). C. 245.

https://doi.org/10.1134/S2079562918030120 [Rogozhkin S.V., Nikitin A.A., Khomich A.A., Iskandarov N.A., Khoroshilov V.V., Bogachev A.A., Lukvanchuk A.A., Raznitsyn O.A., Shutov A.S., Fedin P.A., Kuibeda R.P., Kulevov T.V., Vasiliev A.L., Presniakov M.Yu., Kravchuk K.S., Useinov A.S. // Phys. At. Nucl. 2019. V. 82 (9). P. 1239. https://doi.org/10.1134/S1063778819090072].

15. Rogozhkin S.V., Bogachev A.A., Nikitin A.A., Vasiliev A.L., Presnvakov M.Yu., Tomut M., Trautmann Ch. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2021. V. 486. P. 1.

https://doi.org/10.1016/j.nimb.2020.10.017

Influence of Fe Ion Irradiation at 500°C on the Nanostructure of Oxide Dispersion-Strengthened Steels

S. V. Rogozhkin^{1, *}, A. V. Klauz¹, A. A. Bogachev¹, A. A. Khomich¹, P. A. Fedin¹, and O. A. Raznitsyn¹

¹National Research Centre "Kurchatov Institute", Moscow, 123182 Russia

*e-mail: Sergev.Rogozhkin@itep.ru

Received November 11, 2022; revised November 14, 2022; accepted November 14, 2022

Abstract—Radiation-induced changes in ODS steels under iron ion irradiation up to a dose of 100 dpa at 500°C were analyzed with transmission electron microscopy. Although the size of oxide inclusions remained virtually unchanged under irradiation, a strong decrease in their density was observed in 10Cr ODS and KP-3 ODS steels, whereas in Eurofer ODS the density of oxides did not change. Y-Ti-O and Y-Al-O oxides in 10Cr ODS and KP-3 ODS steels showed lower radiation stability compared to Y-O oxides in Eurofer ODS steel.

Keywords: oxides, transmission electron microscopy, oxide dispersion-strengthened steel, irradiation, ions

——— ПЕРСПЕКТИВНЫЕ КОНСТРУКЦИОННЫЕ МАТЕРИАЛЫ ————

УДК 621.793

ФОРМИРОВАНИЕ ПЕРСПЕКТИВНЫХ ПЛЕНОЧНЫХ ЭЛЕКТРОДНЫХ СИСТЕМ С ИСПОЛЬЗОВАНИЕМ РАЗЛИЧНЫХ МЕТОДОВ ВАКУУМНОГО НАПЫЛЕНИЯ

© 2022 г. С. Г. Давыдов^{а,} *, А. Н. Долгов^а, А. А. Козлов^а, В. А. Максимов^а, В. О. Ревазов^а, Р. Х. Якубов^а

^а Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова, Москва, 127055 Россия *E-mail: vniia4@vniia.ru

Поступила в редакцию 13.05.2022 г. После доработки 13.05.2022 г. Принята к публикации 16.05.2022 г.

Представлен автоматизированный вакуумно-технологический комплекс ЛОТОС-2I-VE и текущее состояние в области создания пленочных электродных систем. Рассмотрены особенности имеющегося технологического оборудования для создания перспективных многофункциональных пленочных покрытий.

Ключевые слова: эрозионностойкие пленки, пленочный электрод, магнетронное распыление **DOI:** 10.56304/S2079562922030113

введение

Пленочные покрытия нашли широкое применение в слаботочных устройствах, таких как микросхемы, и сильноточных устройств, работающих в условиях быстропротекающих процессов. К последним предъявляются требования высокой эрозионной стойкости.

При изготовлении перспективных пленочных покрытий во ФГУП "ВНИИА" используется автоматизированный ваккумно-технологический комплекс (ВТК) ЛОТОС 2I-VE, оснащенный устройствами физического и термического распыления, имеющий также набор инструментов для качественной подготовки поверхности подложки под нанесение покрытий.

ВАКУУМНО-ТЕХНОЛОГИЧЕСКИЙ КОМПЛЕКС ЛОТОС 2I-VE

В состав ВТК ЛОТОС 2I-VE входят: вакуумная камера, установленная на металлическом каркасе, откачные средства и электротехнические шкафы, в которых размещены блоки управления и питания.

Имеющиеся средства вакуумной откачки позволяют получать безмасляный вакуум глубиной до 5 \cdot 10⁻⁵ Па. Общий вид ВТК ЛОТОС 2I-VE представлен на рис. 1.

Комплекс позволяет выполнять следующие операции за один технологический цикл откачки:

 формирование одно/многокомпонентных пленок различного функционального назначения методом магнетронного распыления на постоянном токе (MP),

 – формирование субмикронных структур (диэлектрики, проводники, полупроводники) методом ионно-лучевого распыления (ИЛР),

 – формирование пленок с повышенными требованиями к наличию различного рода примесей методом электронно-лучевого распыления (ЭЛР),

 термическая активация подложки и последующий вакуумный отжиг сформированных пленок с использованием резистивного нагревателя с температурой до 600°С.

Вакуумный комплекс имеет хороший потенциал для модернизации, в частности в настоящее время выполняется его дооснащение ВЧ-магнетроном, многоканальной системой газонапуска и генератором кислорода. В результате, становится возможным формирование широкой гаммы оксидсодержащих пленок, а наличие генератора кислорода позволяет получать пленки с минимальным количество нежелательных примесей. Многоканальная система газонапуска расширяет возможности по формированию сложносоставных пленок переменного состава, а высокий уровень автоматизации комплекса обеспечивает высокую повторяемость формируемых пленочных структур.

Интегрированное программное обеспечение простой архитектуры, позволяющее выполнять



Рис. 1. Вакуумный технологический комплекс ЛОТОС 2I-VE.

технологические операции как в ручном, так и в автоматическом режиме, делает возможным более полное раскрытие исследовательских возможностей настоящего вакуумного комплекса.

ОБЗОР РЕЗУЛЬТАТОВ ФОРМИРОВАНИЯ ПОКРЫТИЙ И НЕКОТОРЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

ВТК "Лотос" активно применяется при изготовлении узлов экспериментальных макетов миниатюрных разрядников нового поколения для формирования пленочных покрытий в широком диапазоне толщин от 20 нм до 10 мкм. Для обеспечения оперативного контроля толщины и электрического сопротивления выполнена разработка и внедрение стенда по контролю сопротивления методом Кельвина с использованием четырехзондового измерительного устройства (рис. 2).

На ВТК "Лотос" успешно реализовано изготовление следующих пленочных систем:

 из сложносоставных мишеней магнетронным распылением на постоянном токе в среде аргона получены пленки состава SiC, TiC, Bi:YIG,

- магнетронным распылением на постоянном токе в реакционной среде: TiN, AlN, ZrN, Ti(O, N), Mg(O, N), Al(O, N), Zr(O, N) и др.,

– методами ИЛР, МР и ЭЛР выполнено осаждение пленок из мономишеней, такие как V, Nb, Ta, Ni, Ti и др.

Общий вид сформированных пленочных композиций на различных типах подложек представлен на рис. 2–4.

С использование стенда получены следующие результаты [1]:

 установлено, что уменьшение проводящих свойств пленки после ее отжига носит необратимый характер и чем меньше шероховатость подложки, тем меньше это изменение,

– наибольшей проводимостью обладают пленки из АМц и ковара, которые при толщине 1.5 мкм обеспечивают значения 4.62 и 1.21 Ом⁻¹ соответственно,

 на основе статистической обработки экспериментальных данных предложены уравнения регрессии, позволяющие с заданной точностью предсказывать значения толщины пленок широкой номенклатуры материалов исходя из требований к их поверхностной проводимости.

Перспективными пленочными электродными системами могут считаться композиции на базе электрически эрозионностойких материалов. В работе [2] автором приведены результаты экспериментальных исследований эрозии различ-



Рис. 2. Стенд по контролю сопротивления и толщины пленок.



Рис. 3. Образцы пленочных электродных систем: АМц (слева), TiN (справа).

ных материалов электродов, имеющих различный химический состав и различную кристаллическую структуру. Отмечена невозможность выбора конкретного эрозионно-стойкого материала, ввиду отсутствия доминирующего механизма эрозии. Однако, среди чистых металлов наиболее устойчивые к эрозии выделяются вольфрам (W), молибден (Mo), медь (Cu), титан (Ti), хром (Cr). Подчеркивается перспективность использования гетерогенных композиций металл – неметалл типа систем Me – MeC, Me – MeN или Me – Me(C, N) (где Me – металл из следующего ряда: Ti, V, Cr, Ni, Zr, Nb, Mo, Ta).

Результаты исследований [3] показывают, что для образования дугового разряда в вакууме, инициированного поджигающим искровым разрядом по поверхности диэлектрика, где в качестве диэлектрика используется керамика на базе оксида алюминия, ионизации газовых включений в порах диэлектрика может быть недостаточно для обеспечения перехода разряда в режим короткого замыкания и тогда, недостаток заряженных частиц в канале тока может быть возмещен только за счет эрозии материала электрода. В этой связи, повышенная эрозионная стойкость пленочного электрода может приводить к уменьшению доли эмитируемых частиц и к нестабильности инициирования разрядов. Также немаловажным фактором остается обеспечение необходимой прочности сцепления подложки и многослойной композиции, которая может быть повышена за счет использования промежуточного слоя.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе представлена установка вакуумного напыления. Приведены ее возможности в части



Рис. 4. Образец после испытаний и в исходном состоянии; материал пленки: Ті (вверху), АМц (внизу).



Рис. 5. Пленки различных материалов на подложке из стали 12Х18Н10Т.

формирования эрозионностойких пленок. Отмечено, что перспективной эрозионностойкой системой может быть многослойная композиция, имеющая структуру подслой — проводящий слой — эрозионный слой, где каждый слой обеспечивает выполнение определенных требований.

В дальнейшем, планируется проведение комплекса исследовательских работ, направленных на поиск материалов многослойных пленочных покрытий, предназначенных для изготовления элементов электродных систем миниатюрных разрядников нового поколения, обеспечивающих высокую степень работоспособности разрядников.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- Давыдов С.Г., Максимов В.А., Ревазов В.О., Якубов Р.Х. // Труды 15-й Междунар. конф. "Пленки и покрытия 2021". 2021. Санкт-Петербург: ООО "РПК "Амиго Принт". С. 128–132.
- Кулаева М.В. Автореферат дисс. к.т.н. 1998. Владикавказ: Северо-Кавказский гос. технол. унив.
- Davydov S.G., Dolgov A.N., Kozlov A.A., Maksimov V.A., Yakubov R.Kh. // J. Phys.: Conf. Ser. 2021. V. 2059 (1). P. 012006.

e-mail: vniia4@vniia.ru Received May 13, 2022; revised May 13, 2022; accepted May 16, 2022

Abstract—The automated vacuum technology complex LOTUS 2I-VE is presented, and the current state in the field of creation of film electrode systems is considered. The present features of the technological equipment for the creation of promising multifunctional films are examined.

Keywords: erosion resistant film, thin film electrode, magnetron sputtering

S. G. Davydov¹, *, A. N. Dolgov¹, A. A. Kozlov¹, V. A. Maksimov¹, V. O. Revazov¹, and R. Kh. Yakubov¹ ¹Dukhov Automatics Research Institute (VNIIA), Moscow, 127055 Russia

———— ТВЕРДЫЕ ТЕЛА В ЭКСТРЕМАЛЬНЫХ УСЛОВИЯХ ———

УДК 537.534

МОДИФИЦИРОВАНИЕ УГЛЕРОД-УГЛЕРОДНЫХ КОМПОЗИЦИОННЫХ МАТЕРИАЛОВ ПРИ ВЫСОКОДОЗНОМ ВОЗДЕЙСТВИИ ИОНОВ ПЛАЗМЫ ТЕРМОЯДЕРНЫХ УСТАНОВОК

© 2022 г. Н. Н. Андрианова^{*a*}, А. М. Борисов^{*a*, *b*}, Е. С. Машкова^{*c*}, М. А. Овчинников^{*c*}, *

^а Московский авиационный институт (национальный исследовательский университет), Москва, 125993 Россия ^b Московский государственный технологический университет "СТАНКИН", Москва, 127055 Россия ^c Научно-исследовательский институт ядерной физики имени Д.В. Скобельцына, Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова, Москва, 119991 Россия

> *E-mail: ov.mikhail@gmail.com Поступила в редакцию 30.05.2022 г. После доработки 03.06.2022 г. Принята к публикации 17.06.2022 г.

Экспериментально исследовано модифицирование углерод-углеродных композиционных материалов при высокодозном (> $3 \cdot 10^{18}$ см⁻²) воздействии ионов He⁺, Ne⁺, Ar⁺ и C⁺ с энергиями 10–30 кэВ и температурах облучения от комнатной до 600°С. Показано, что облучение углеродных волокон ионами с энергией десятки кэВ позволяет имитировать радиационные нарушения в графитах с уровнем до несколько сотен смещений на атом (сна), и дает возможность единовременного исследования воздействия ионного облучения под различными углами падения ионов на обращенные к плазме материалы термоядерных установок. При имитации радиационных нарушений в условиях механических напряжений, включающих как сжатие, так и растяжение подходит облучение ионами гелия. Облучение более тяжелыми ионами инертных газов (Ne, Ar) подходит для имитации механических напряжений сжатия. Температурные зависимости ионно-электронной эмиссии отражают текстуру поверхности графитовых материалов и могут служить методом *in-situ* контроля текстуры оболочки волокна.

Ключевые слова: углеродное волокно, углерод-углеродный композит, облучение, ионы He⁺, Ne⁺, Ar⁺ и C⁺, радиационные нарушения, число смещений на атом, ионно-электронная эмиссия, морфология и микроструктура оболочки волокна

DOI: 10.56304/S2079562922030034

введение

Исследования взаимодействия плазмы с обращенными к ней материалами в термоядерных устройствах определяет выбор вида ионов изотопов водорода, дейтерия, гелия, кислорода и собственных ионов, а также диапазон энергий от тепловых энергий до нескольких кэВ [1, 2]. Для углеродных материалов такими ионами наряду с изотопами водорода и гелия являются ионы примесей O⁺, C⁺, N⁺ [3]. Для сравнения используются также ионы других инертных газов. В настоящее время перспективными материалами для термоядерных установок (ТЯУ) рассматриваются вольфрам и бериллий [4-6]. Вместе с тем, графитовые материалы используются в современных ядерных реакторах, таких как газоохлаждаемые реакторы [7], предлагаются для использования в конструкциях реакторов IV поколения, включая сверхвысокотемпературный реактор и жидкосолевой реактор [8]. Компоненты активной зоны

реакторов подвергаются радиационным повреждениям с уровнями порядка 10 смещений на атом (CHA) [9], а в реакторах IV поколения до 200 смешений на атом в течение ожидаемого срока службы [8]. Для обоснования безопасности продления срока эксплуатации существующих атомных электростанций и разработки материалов для булуших конструкций реакторов важными являются исследования радиационных эффектов. Графитовые материалы и графитовые композиты претерпевают изменение размеров при воздействии радиационно-индуцированных атомных смещений [10, 11]. Это имеет значение для нынешних и будущих технологий не только для атомных реакторов, но и для действующих ТЯУ с углеродными материалами [5]. Важной проблемой как в случае применения графитоподобных материалов, так и аналогов является необходимость в детальной характеристике топографии поверхности и ее изменениях в сложных магнитных полях термоядерных установок с различными углами падения частиц на поверхности вакуумной камеры.

Во время эксплуатации и хранения в графитовых материалах может возникать градиент механических напряжений из-за многих факторов, включая статическую или сейсмическую нагрузку, температурные градиенты, изменения размеров, вызванные нейтронным облучением в атомных реакторах и ионным облучением в ТЯУ. Для имитации таких условий как нельзя лучше подходит применение ионно-лучевого воздействия [12–14]. Градиент СНА при ионном облучении приводит к градиенту размерных изменений, что в свою очередь, к неоднородным механическим напряжениям и их пластической релаксации. Наряду с облучением собственными ионами, т.е., ионами углерода, в имитационных экспериментах используют облучение ионами инертных газов и химически активных элементов. При интенсивном ралиационном воздействии основными факторами являются как процессы накопления дефектов, так и процессы распыления (перенапыления) и модифицирования облучаемой поверхности [1, 11]. В качестве мишеней наряду с опытными образцами материалов часто используют наиболее близкий к монокристаллу графита высокоориентированный пиролитический графит (ВОПГ) [13, 15]. Предполагается, что исследования ВОПГ в наибольшей степени выявляют влияние и роль уникальной анизотропии его свойств, присущей практически всем конструкционным графитам и композитам на его основе. Вместе с тем, углеродное волокно из полиакрилонитрила (ПАН) может служить более подходящим модельным материалом различных графитов и композитов. Оболочка волокна характеризуется высокой степенью графитации и содержит поры, как и конструкционные графиты. Присущая этим материалам пористость уменьшает удельную плотность по сравнению с беспористым ВОПГ. В тоже время, текстурированная оболочка волокна с доминирующим направлением оси с кристаллитов по радиусу волокна позволяет выявить наиболее существенные эффекты, связанные с анизотропией графитовых материалов. Немаловажным является и то, что облучение углеродного волокна позволяет единовременно оценить воздействие ионов во всем интервале углов падения ионов. При нормальном падении ионов относительно оси волокна его вершинная часть облучается по нормали к поверхности. тогда как периферийная часть волокна облучается под скользящими углами падения. Необходимость таких данных неоднократно отмечалась в актуальных задачах исследований для ТЯУ, см., например, [15]. Облучение волокна позволяет также единовременно оценить влияние профиля СНА, а вместе с изменением сорта и энергии

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

ионов варьировать как величину СНА, так и форму его профиля.

В данной работе проводится сравнение и обсуждение как новых, так и ранее полученных данных модифицирования углеродного волокна из ПАН при высокодозном с уровнем в несколько сотен СНА воздействии ионов инертных газов и углерода. Для оценок влияния градиента напряжений на ионно-индуцированные процессы использовали расчеты профилей радиационных нарушений в числе СНА с помощью программы SRIM [13, 14, 16].

ЭКСПЕРИМЕНТ

Облучение ионами He⁺, Ne⁺, Ar⁺ и C⁺ с энергиями от 10 до 30 кэВ образцов однонаправленного композита КУП-ВМ, армированного волокнами марки ВМН-4 на основе ПАН, проводили при нормальном падении ионов на мишень на масс-монохроматоре НИИЯФ МГУ [17] по методике, подробно описанной в [16]. Образцы имели форму прямоугольных пластинок с размерами $15 \times 40 \times 2$ мм. Армирующие углеродные волокна были параллельны длинной стороне пластинок. Держатель мишени с резистивным нагревателем позволял варьировать температуру мишени от комнатной до 600°С. Температуру контролировали с помощью хромель-алюмелевой термопары, спай которой укрепляли на обучаемой стороне мишени вне зоны облучения. Плотность ионного тока составляла 0.1-0.4 мА/см². Флуенсы облучения во всех случаях были не меньше $3 \cdot 10^{18}$ см⁻². Мониторинг ионного облучения проводили путем периодической регистрации тока ионов и электронов для определения флуенса облучения и коэффициентов ионно-электронной эмиссии и распыления. Образцы анализировали при помощи растровой электронной микроскопии (РЭМ) с использованием микроскопа Lira 3 TESCAN и лазерной гониофотометрии (ЛГФ) [16]. Микроструктуру поверхностного слоя исследовали с помощью спектроскопии комбинационного рассеяния света (КРС) с длиной волны 514.5 нм на спектрометре Horiba Yvon T64000.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Сравнение *in-situ* измерений коэффициента γ ионно-электронной эмиссии при облучении ионами гелия и аргона с изменением температуры мишени от комнатной до 600°С представлено на рис. 1. Уменьшение коэффициента γ с ростом температуры при облучении ионами He⁺ качественно отличается от температурных зависимостей γ , характерных при аналогичном облучении ионами других инертных газов (Ne⁺ и Ar⁺) и азота N₂⁺ [16]. Для всех ионов, кроме гелия, облучение



Рис. 1. Графики зависимости коэффициента ионно-электронной эмиссии от температуры облучения композита КУП-ВМ. Данные для облучения ионами аргона взяты из [16].

при температурах выше температуры Т_а динамического отжига радиационных нарушений приводит к ступенчатому росту γ (рис. 1a). Высокодозное облучение при комнатной температуре аморфизирует поверхностный слой, включая облучение ионами гелия [16, 18]. Процесс аморфизации при $T < T_a$ является пороговым по уровню СНА. Уровень СНА увеличивается с температурой так, что при $T > T_{a}$ становится неопределенно (бесконечно) большим. Вместе с тем, микроструктура при облучении при $T > T_a$ по степени дефектности, текстурированности. морфологии поверхности сильно зависит как от температуры облучения, так и от профиля СНА. Это демонстрирует рис. 2, на котором сведены данные работ [19, 20] по профилям СНА и РЭМ-изображениям поверхности волокна при облучении при $T > T_a$ ионами He⁺, Ar⁺ и C⁺ с энергией 30 кэВ.

При облучении ионами аргона с энергией 30 кэВ фиксируется развитая гофрированная структура волокон, начиная с температуры $T_{\rm a} \sim 150-200^{\circ}{\rm C}$ динамического отжига радиационных нарушений в графитовых материалах [16]. При нормальном относительно оси волокон падении ионов гофрированная поверхность представляет собой квазипериодическую последовательность гофров с ребрами, перпендикулярными оси волокна. Энергия ионов и температура облучаемого композита оказывают значительное влияние на морфологию гофрированного волокна. Исследования процессов образования на поверхности углеродных волокон из ПАН ионно-индуцированных поверхностных структур при температурах до 600°С позволяют связать их с анизотропными радиационно-индуцированными пластическими процессами формоизменения углеродных материалов [19]. Характер изменений рельефа углеродного волокна на основе ПАН при высокодозном ионном облучении связан с положением максимума профиля СНА. Так, при облучении ионами неона, аргона и азота с энергиями 15-30 кэВ [21, 22] наблюдается образование поперечного субмикронного гофрирования поверхности волокна, когда максимум профиля радиационных нарушений находится вблизи поверхности волокна. При облучении ионами гелия энергии 30 кэВ, когда максимум профиля СНА расположен на некотором расстоянии от облучаемой поверхности волокна, наблюдается продольное микрогофрирование [19]. Облучение ионами углерода не приводит к визуальному изменению поверхности углеродного волокна, сохраняя его гладким в результате имплантации и самораспыления поверхности [20].

Что касается качественного различия температурных зависимостей $\gamma(T)$ для ионов He⁺ и других ионов инертных газов (рис. 1), то предполагается, что это также связано с качественно различным ионно-лучевым модифицированием структуры оболочки волокна, обусловленным различиями формы профилей СНА для ионов He⁺ и других ионов инертных газов. Для всех ионов, кроме гелия, облучение при повышенных температурах подавляет исходную текстуру, характерную для совершенной графитовой оболочки волокна ВМН-4 [23]. Это приводит при температурах облучения выше температуры $T_{\rm a}$ динамического отжига радиационных нарушений к ступенчатому росту у. При облучении ионами гелия текстура оболочки волокна сохраняется, а уменьшение при этом коэффициента у обусловлено анизотропией ионно-электронной эмиссии, типичной для высокотекстурированного пирографита [24, 25].



Рис. 2. РЭМ изображения и соответствующие им профили СНА для случаев облучения ионами Ar^+ при температуре $T = 300^{\circ}$ С, ионами He^+ при $T = 400^{\circ}$ С и ионами C^+ при $T = 250^{\circ}$ С.

Изменение кристаллической структуры поверхности углеродных волокон из ПАН до и после облучения исследовалось при помощи спектроскопии КРС, см. рис. 3. В спектрах КРС углеродных волокон из ПАН, как и в спектрах других графитоподобных материалов первичный анализ разупорядоченности кристаллической структуры осуществляется путем рассмотрения пиков графита *G* при смещениях частоты $\Delta k \sim 1580 \text{ см}^{-1}$ и пика *D* при $\Delta k \sim 1350 \text{ см}^{-1}$ обусловленного де-

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022



Рис. 3. Спектры КРС композита КУП-ВМ для выбранных случаев облучения.

фектностью кристаллической структуры [26]. Малая величина сигнала *D* пика относительно G-пика и их разрешение в спектрах КРС необлученного углеродного волокна из ПАН указывает на упорядоченную кристаллическую структуру оболочки. Спектры КРС облученных образцов показывают увеличение сигнала в области смещений *D*-пика, что отражает значительную разупорядоченность в модифицированном слое. В зависимости от структуры графитоподобного материала, при увеличении количества дефектов в спектрах могут появляться дополнительные пики при смещениях $\Delta k \sim 1200$, 1500 и 1620 см⁻¹ [26]. Появление этих пиков приводит к уширению сигналов в области смещений D и G пиков, что наблюдается в спектрах КРС облученных углеродных волокон из ПАН. Спектроскопия КРС показала, что облучение во всех случаях приводит к значительной дефектности кристаллической структуры модифицированных слоев при сохранении их графитовой основы. Для всех ионов при температурах облучения выше ~200°С на поверхности углеродного волокна фиксируется графитоподобный слой. Степень дефектности кристаллитов уменьшается с ростом температуры облучения так, что при достаточных больших температурах облучения спектры КРС становятся, как видно из рис. 3, близкими для разных ионов, по сравнению с их существенным различием при температурах 250-400°C [19, 27].

Для имитации поведения графитов при нейтронном облучении в условиях градиента напряжений в [14] использовали образцы ВОПГ, облучаемых ионами аргона и углерода с энергией 400 кэВ и 3 МэВ при температуре облучения 200 и 700°C (рабочей температуры высокотемпературных атомных реакторов) и уровне смещений не больше 6 СНА. Различия в изменениях морфологии были одинаковыми. Также одинаковыми по форме были и профили СНА с максимумом по глубине пробега частиц, аналогичные форме профиля для ионов 30 кэВ He⁺ на рис. 2. В наших экспериментах при уровнях радиационных нарушений больше 100 СНА форма профиля СНА для ионов 30 кэВ Ar⁺ и 30 кэВ C⁺ существенно иная: монотонный спад СНА от поверхности, обусловленный движением границы поверхности при распылении [16]. Учет этого различия и учет релаксации механических напряжений путем пластической деформации двойникованием позволяет объяснить различие морфологии поверхности для случаев облучения ионами He⁺ и Ar⁺ с энергией 30 кэВ [19]. Вместе с тем, различие морфологии поверхностей для случаев облучения ионами 30 кэВ C⁺ и 30 кэВ Ar⁺ с сопоставимыми по форме профилями СНА объяснения в рамках представлений в [19] не находят.

Анализ ситуации показывает, что облучение графита ионами углерода с энергией в десятки кэВ для имитации высоких уровней СНА представляется проблематичным из-за образования



Рис. 4. РЭМ-изображения поверхности углеродных волокон композита КУП-ВМ после облучения ионами 30 кэВ C^+ и последующего облучения ионами 30 кэВ N_2^+ в эпицентре падения пучка на образец (слева) и на периферии (справа).

при облучении имплантированного слоя углерода со структурой. отличной от структуры облучаемого графитового материала. В описываемых экспериментах это проявилось в кардинальном различии морфологии углеродного волокна, облученного ионами аргона и углерода, несмотря на близкие профили СНА (рис. 2). При высокодозном облучении структура поверхностного слоя из-за движения границы поверхности при самораспылении полностью определяется структурой имплантированного слоя. Спектроскопия КРС показывает, что по микроструктуре этот слой близок к поликристаллическим графитам. Вместе с тем, характерная для оболочки волокна текстура отсутствует. Это подтверждает дополнительный эксперимент с облучением имплантированного углеродного слоя ионами азота, который эффективно приводит к поперечному гофрированию текстурированной поверхности волокна [22].

На рис. 4 приведены РЭМ изображения облученного ионами азота с энергией 30 кэВ при температуре ~300°С композита КУП-ВМ, первоначально облученного ионами углерода с энергией 30 кэВ при температуре 250°С, в эпицентре пучка ионов азота (рис. 4а) и на периферии (рис. 4б). Сравнение показывает, что процесс гофрирования происходит исключительно на поверхности оболочки волокна после распыления имплантированного слоя углерода. На периферии зоны облучения ионами азота, где флуенс облучения был недостаточным для распыления имплантированного углеродного слоя, РЭМ изображения являются характерными для травления поверхности разупорядоченного углерода [28]. Необходимая для ионно-индуцированного гофрирования кристаллическая текстура в имплантированном углеродном слое в использованных условиях облучения не формируется.

Возможности имитации радиационных нарушений в ядерных графитах путем высокодозного облучения ионами с энергиями десятки кэВ обсуждали в [22]. Результаты сопоставления воздействия на графиты ионного и нейтронного облучении сводятся к следующему. Деструкция свойств углеродных материалов при нейтронном облучении проявляет пороговый характер по уровню СНА, зависящему от температуры облучения с минимумом скорости размерных изменений при 400°С [10, 29, 30] Гофрирование поверхности углеродного волокна из ПАН при облучении ионами Ar⁺ в условиях градиента механических напряжений сжатия также проявляет пороговый характер по уровню СНА и имеет минимальные геометрические параметры при той же температуре облучения 400°С. При температуре облучения 250°С пороговый уровень гофрирования ~50 СНА, тогда как при температуре облучения 400°С - ~75 СНА [16, 31]. При количественном обобщении данных СНА необходимо учитывать, что эффективность разупорядочения тяжелыми ионами может до четырех раз быть меньше таковой для легких частиц, включая нейтроны [32]. Такой учет дают, например, близкие значения аморфизации эталонного ядерного графита РОСО-АХЕ-5Q при ионном и нейтронном облучении при комнатной температуре [33].

выводы

Проведено сравнение и обсуждение как новых, так и ранее полученных данных по облучению углеродного волокна из ПАН ионами инертных газов и углерода с энергиями в десятки кэВ и флуенсами >3 \cdot 10¹⁸ см⁻². Мониторинг изменения структуры поверхности волокна при изменении температуры облучения от комнатной до 600°С с помощью *in-situ* измерений коэффициента γ ионно-электронной эмиссии позволяет предположить что температурные зависимости ионноэлектронной эмиссии отражают текстуру поверхности, что можно использовать для контроля текстуры оболочки углеродного волокна.

Для температур облучения выше температуры динамического отжига радиационных нарушений проведено сравнение морфологии и микроструктуры поверхностного слоя волокна для различных ионов. Для оценок влияния градиента напряжений на ионно-индуцированные процессы использовали расчеты профилей радиационных нарушений в числе СНА.

Рассмотренные случаи показывают, что облучение углеродных волокон ионами с энергией десятки кэВ позволяет имитировать радиационные нарушения с уровнем в сотни СНА в ядерных энергетических установках, открывает возможности единовременного исследования воздействия ионного облучения под различными углами падения ионов на обращенные к плазме материалы термоядерных установок. При имитации радиационных нарушений в условиях неоднородных механических напряжений, включающих как сжатие, так и растяжение подходит облучение ионами гелия. Облучение более тяжелыми ионами инертных газов (Ne, Ar) подходит для имитации механических напряжений сжатия.

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено при частичной финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект № 21-79-30058).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. Atomic and Plasma-Material Interaction Data for Fusion. 1991. Vienna: IATA. V. 1.
- 2. Temmerman G.D., Heinola K., Borodin D. et al. // Nucl. Mater. Energy. 2021. V. 27. P. 100994.
- 3. *Eckstein W., Bohdansky J., Roth J.* Physical Sputtering. 1991. Vienna: IATA. V. 1. P. 51–62.
- Merola M., Escourbiac F., Raffray R., Chappuis P., Hirai T., Martin A. // Fusion Eng. Des. 2014. V. 89. P. 890–895.
- Ding F., Luo G.-N., Chen X., et al. // Tungsten. 2019. V. 1. P. 122–131.
- Khvostenko P.P., Anashkin I.O., Bondarchuk E.N., et al. // Fusion Eng. Des. A. 2019. V. 146. P. 1108–1112.
- Marsden B.J., Hall G.N. // Comp. Nucl. Mater. 2012. V. 4. P. 325–390.
- Guérin Y., Was G.S., Zinkle S.J., Editors G. // Mater. Res. Soc. Bull. 2009. V. 34. P. 10–14.
- 9. Was G.S. // J. Nucl. Mater. 2007. V. 367-370. P. 11-20.
- Virgil'ev Yu.S., Kalyagina I.P. // Inorg. Mater. 2004. V. 40. P. S33–S49.

- 11. Burchell T.D. // MRS Bull. 1997. V. 22. P. 29-35.
- 12. *Was G.S.* Fundamentals of Radiation Materials Science, 2nd ed. 2014. New York: Springer-Verlag.
- Galy N., Toulhoat N., Moncoffre N. et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B. 2017. V. 409. P. 235–240.
- Liu D., Cherns D., Johns S., et al. // Carbon. 2021. V. 173. P. 215–231.
- 15. *Behrisch R*. Particle Bombardment and Energy Fluxes to the Vessel Walls in Controlled Thermonuclear Fusion Devices. 1991. Vienna: IAEA. V. 1. P. 7–16.
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Mashkova E.S., et al. // Horizons in World Physics. 2013. New York: Nova Science. V. 280. P. 171.
- 17. *Mashkova E.S., Molchanov V.A.* Medium-Energy Ion Reflection from Solids. 1985. Amsterdam: North-Holland.
- Niwase K., Tanabe T. // J. Nucl. Mater. 1991. V. 179– 181. P. 218–222.
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Mashkova E.S., et al. // Vacuum. 2021. V. 188. P. 110177.
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Makunin A.V., et al. // Proc. 25th Int. Conf. Ion Surface Interactions. 2021. V. 2. P. 35–38.
- Аникин В.А., Борисов А.М., Макунин А.В., Машкова Е.С., Овчинников М.А. // Ядерная физика и инжиниринг. 2018. Т. 9 (2). С. 122–129 [Anikin V.A., Borisov A.M., Makunin A.V., Mashkova E.S., Ovchinnikov М.А. // Phys. At. Nucl. 2018. V. 81 (11). P. 1547–1553].
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Kazakov V.A., et al. // Bull. Russ. Acad. Sci.: Phys. 2020. V. 84 (6). P. 707– 712.
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Virgiliev Y.S., et al. // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotr. Neutron Tech. 2008. V. 2 (3). P. 376–379.
- 24. Cernusca S., Fursatz M., Winter H.P., et al. // Europhys Lett. 2005. V. 70 (6). P. 768–774.
- 25. Борисов А.М., Виргильев Ю.С., Машкова Е.С., Немов А.С., Питиримова Е.А. // Поверхность. Рентген., синхротр. нейтр. исслед. 2006. № 1. С. 7–13.
- Ferrari A.C., Robertson J. // Phys. Rev. B. 2000. V. 61. P. 14095.
- Borisov A.M., Vysotina E.A., Mashkova E.S., et al. // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotr. Neutron Tech. 2022. V. 16 (2). P. 211–216.
- Borisov A.M., Virgil'ev Y.S., Mashkova E.S. // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotr. Neutron Tech. 2008. V. 2 (1). P. 52–67.
- 29. Blackstone R. // J. Nucl. Mater. 1977. V. 65. P. 72.
- Burchell T.D., Eatherly W.P. // J. Nucl. Mater. 1991. V. 179–181. P. 205.
- Andrianova N.N., Borisov A.M., Virgil'ev Yu.S., et al. // J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotr. Neutr. Tech. 2014. V. 8 (3). P. 513–518.
- Schilling W., Ullmaier H. // Material Science and Technology. Ed. by Cahn R.W., Haasen P., and Kramer E.J. 1994. Weinheim: VCH. Ch. 9.
- 33. Андрианова Н.Н., Борисов А.М., Виргилиев Ю.С., Машкова Е.С. // ВАНТ. Сер.: Технич. физика автоматиз. 2013. № 67 (1). С. 119–125.
Modification of Carbon–Carbon Composite Materials under High-Fluence Irradiation of Fusion Plasma Ions

N. N. Andrianova¹, A. M. Borisov^{1, 2}, E. S. Mashkova³, and M. A. Ovchinnikov^{3, *}

¹Moscow Aviation Institute (National Research University), Moscow, 125993 Russia
 ²Moscow State Technological University "STANKIN", Moscow, 127055 Russia
 ³Skobeltsyn Institute of Nuclear Physics, Moscow State University, Moscow, 119991 Russia
 *e-mail: ov.mikhail@gmail.com
 Received May 30, 2022; revised June 3, 2022; accepted June 17, 2022

Abstract—The modification of carbon-carbon composite materials under high fluence $(>3 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-2})$ irratiation with He⁺, Ne⁺, Ar⁺ and C⁺ ions with an energies of 10–30 keV at irradiation temperatures from room temperature to 600°C has been studied experimentally. It is shown that irradiation of carbon fibers with the ion energies of tens keV allows to imitate radiation damage in graphites with levels of radiation damage up to several hundred displacements per atom (*dpa*), and makes it possible to simultaneously study the effect of ion irradiation at different angles of incidence on plasma-facing materials of fusion plants. The irradiation with helium ions is appropriate for imitation of radiation damage under mechanical stress conditions which include both compression and stretching. Irradiation with heavier ions of noble gas ions (Ne, Ar) is applicable to imitation of mechanical stresses of compression. Temperature dependences of the ion-induced electron emission reflect the surface texture of graphite materials and can be used as a method of *in-situ* control of the fiber shell texture.

Keywords: carbon fiber, carbon-carbon composite, irradiation, He⁺, Ne⁺, Ar⁺ and C⁺ ions, radiation damage, displacements per atom, ion-induced electron emission, fiber shell morphology and microstructure

——— ТВЕРДЫЕ ТЕЛА В ЭКСТРЕМАЛЬНЫХ УСЛОВИЯХ ——

УДК 539.171.4

КРИТИЧЕСКОЕ ПОВЕДЕНИЕ МЕТАЛЛОВ, АКТИНИДОВ И МЕТАЛЛИЧЕСКОГО ПЛУТОНИЯ ПРИ ВЫСОКОИНТЕНСИВНОМ ВНЕШНЕМ ВОЗДЕЙСТВИИ

© 2022 г. Н. И. Сельченкова^{*a*}, А. Я. Учаев^{*a*}, *

^а Российский федеральный ядерный центр — ВНИИЭФ, Саров, Нижегородская обл., 607188 Россия

**E-mail: otd@expd.vniief.ru* Поступила в редакцию 28.06.2022 г. После доработки 28.06.2022 г. Принята к публикации 04.07.2022 г.

Работа посвящена установлению общих закономерностей динамических деструктивных процессов (динамического разрушения и диспергирования), протекающих в металлах, при высокоинтенсивном внешнем воздействии в динамическом диапазоне неравновесных состояний $t \sim 10^{-6}-10^{-9}$ с. Используя парный потенциал кристаллической решетки, определено выражение для сжимаемости (восприимчивости) нагружаемого образца, которая зависит от плотности центров разрушения. Установление общих релаксационных признаков для неравновесных систем позволяет прогнозировать поведение неисследованных систем. Спрогнозировано поведение металлического плутония, тория, урана в диапазоне неравновесных состояний $t \sim 10^{-6}-10^{-9}$ с, $E \sim 30-300$ Дж/г с применением установленного временного инварианта поведения металлов в экстремальных условиях и экспериментальных данных по критическому давлению, приводящего к разрушению, металлического плутония.

Ключевые слова: общие закономерности, динамические деструктивные процессы, прогнозирование поведения неисследованных систем, поведение металлического плутония

DOI: 10.56304/S2079562922030447

введение

Результаты фундаментальных исследований процессов динамического разрушения и диспергирования металлов позволили установить универсальные синергетические признаки поведения металлов в явлении динамического разрушения, что дало возможность прогнозировать поведение неисследованных металлов, включая актиниды в экстремальных условиях [1, 2].

При исследовании поведения конденсированных сред в экстремальных условиях в настоящее время применяются высокоэнергетические импульсные установки (импульсные ядерные реакторы, импульсные ускорители электронов, фемтосекундные лазеры). Мощностные возможности таких установок напрямую связаны со стойкостью элементов и узлов различной геометрии. Стойкость, например, к термомеханическому воздействию определена динамическими деструктивными процессами, возникающих при многоволновом движении сред, что может привести к локальной кумуляции энергии. Кумуляция энергии может существенно уменьшить время сохранения функциональных свойств.

Следовательно, важно знать количественные характеристики динамических деструктивных процессов, протекающих не только в конструкционных металлах и сплавах, но и в металлических актинидах при высокоинтенсивном внешнем воздействии.

ОСНОВНАЯ ЧАСТЬ

Для неравновесных систем применим принцип Ле Шателье-Брауна, который показывает, что внешнее воздействие на термодинамическую систему вызывает в ней такие процессы, которые ослабляют внешнее воздействие [3]. Необходимо отметить, что этот принцип неприменим к процессам, переводящим систему в устойчивое состояние – например, к взрывным явлениям, когда в системе отсутствуют положительные обратные связи. Количественной характеристикой принципа Ле Шателье-Брауна является обобщенная восприимчивость. Для механических систем обобшенной восприимчивостью является сжимаемость [4]. Например, для разрушаемого динамически твердого тела сжимаемость связана с плотностью центров разрушения. На пороге макроразрушения сжимаемость неограниченно возрастает точно также, как скорость накопления центров разрушения и скорость центрообразования [1, 4, 5].



Рис. 1. Скорость центрообразования в приведенных координатах t/t_p , $J(t)/J_{max}(t)$ [1, 5].

Существует большое количество явлений, когда за макроскопическим поведением системы стоит сложное микроскопическое поведение.

В простейших случаях микроскопические флуктуации усредняются, если рассматривать явления на больших масштабах. Усредненные величины удовлетворяют классическим уравнениям. Например, ламинарное течение в гидродинамике, когда микроскопические флуктуации усредняются и течение описывается классическими гидродинамическими уравнениями, или поведение классических механических систем, когда кинетика механических систем описывается уравнениями в частных производных. В этих системах описание динамики исследуется (описывается) преимущественно на одном масштабном уровне.

Существует более широкий класс систем, в которых флуктуации проявляются на макроскопических масштабах. К такому классу систем относятся развитая турбулентность потока жидкости [6-8]; критические явления в конденсированных средах [4, 5]; явление динамического разрушения конденсированных сред [1, 5]; сейсмотектоника [9]; магнитные явления в ферромагнетиках [4] и т.д. На макроповедение перечисленных систем существенную роль влияют флуктуации на всех промежуточных масштабах. Элементы неравновесных систем при внешних воздействиях проявляют коллективное поведение на различных масштабно-временных уровнях, т.е. проявляют синергетические признаки.

В работе [10] приведены значения отношений $\frac{H_{\mathfrak{s}} + L_{\mathfrak{n}\mathfrak{n}}}{H_{\mathfrak{cy}\mathfrak{f}\mathfrak{n}}}, \frac{E_{\kappa \mathfrak{p}}}{H_{\mathfrak{s}} + L_{\mathfrak{n}\mathfrak{n}}}, \frac{E_{\kappa \mathfrak{p}}}{H_{\mathfrak{s}} + L_{\mathfrak{n}\mathfrak{n}}},$ где $E_{\kappa \mathfrak{p}}$ критическая плотность поглощенной энергии, приводящая к

разрушению ряда металлов, для значения долговечности $t \sim 10^{-8}$ с; $H_{\rm субл}$ – энтальпия сублимирования, H_9 – энтальпия, $L_{\rm пл}$ – теплота плавления [5, 7–9].

В работах [1, 11] отношение $\frac{E_{\rm kp}}{H_{\rm s} + L_{\rm nn}} = I(t)$ является инвариантом. Поскольку $[E_{\rm kp}(t)/\Gamma\rho(H_{\rm s} + L_{\rm nn})]^{\gamma}t$ = const для всех исследованных металлов, кинетические характеристики, например скорость центрообразования J(t), можно выразить через установленный инвариант I(t).

$$J(t) = J_{\max}(t_p) \exp\left(\frac{tI(t_p)}{A}\right)^{0.2} \left(1 - \frac{tI(t_p)}{A}\right)^{-2.2}$$

Необходимо отметить, что это выражение определяет возможность прогнозирования поведения неисследованных металлов в экстремальных условиях.

На рис. 1 приведен вид скорости центрообразования в приведенных координатах ряда металлов ($J_{max}(t)$ – максимальная скорость центрообразования).

С применением разработанного математического пакета программ интерактивной системы анализа изображений определены количественные характеристики (спектр распределения по размерам) ряда диссипативных структур (плотность гидродинамических мод, спектр продуктов диспергирования, спектр шероховатости центров разрушения). Математическая обработка спектров по размерам позволила определить фрактальную размерность и показатель Херста [1, 5, 11].

В табл. 1 приведены результаты математической обработки диссипативных структур, продуктов диспергирования Cu, Al на различных масштабных уровнях (нано, мезо I, мезо II, макро).

Авторы работы [12] показали, что кристаллическая решетка теряет дальний порядок, когда система получила механическую или тепловую энергию $E_{\rm kp}(t) \sim (H_3 + L_{\rm nn})$. В табл. 1 приведены полосы скольжения кристаллической решетки близ

Масштабный уровень	Образец; толщина	Вид диссипативных структур	Фрактальная размерность, <i>d_f</i>	Показатель Херста, <i>Н</i>
нано	Си; 8 ~ 1 мм	0.0 (<i>Y</i>) 1.439 мкм (<i>Y</i>) 0.0 (<i>X</i>) внутренняя поверхность центров разрушения	~1.67	
мезо І	Cu; высота пирамидки <i>h</i> ~ 0.5 мм	Верх Низ полосы скольжения (×200)	~1.69 — низ ~1.62 — верх	~0.86 – низ ~0.85 – верх
мезо П	Си; 8 ~ 0.2 мм	центры разрушения (×500)	~1.82	_
макро	Си; 8 ~ 0.2 мм	шероховатость поверхностей разрушения (×5)	~1.59	~0.58
макро	Al	продукты диспергирования (×150)	~1.51 – Al ~1.52 – Cu	~0.76 – Al ~0.64 – Cu

Таблица 1. Внешний вид и количественные характеристики диссипативных структур, продуктов диспергирования на различных масштабных уровнях

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

	Уровень исследований			
	наноуровень (шероховатость внутренних поверхностей центров разрушений)	микроуровень		Makboybobelli
Вид воздействия		мезоуровень I (каскад полос скольжения кристаллической решетки)	мезоуровень II (каскад центров разрушения)	макроуровень (шероховатость поверхности разрушения)
Релятивистские электронные пучки	1.565 ± 0.097	1.684 ± 0.126	1.496 ± 0.113	1.486 ± 0.074

Таблица 2. Фрактальные размерности диссипативных структур на четырех различных масштабных уровнях при воздействии релятивистских электронных пучков

образующихся центров разрушений и в образцах с нанесенными возмущениями, подвергнутых ударно-волновому нагружению. Плотность полос скольжения кристаллической решетки характеризует плотность гидродинамических мод, где кристаллическая решетка теряет дальний порядок.

И.Р. Пригожин в работе [7] пишет: "...большинство интересующих нас систем ориентировано во времени на макроскопическом уровне. Их однонаправленность во времени отражает нарушение временной симметрии на микромасштабном уровне. Необратимость существует либо на всех уровнях, либо не существует ни на одном уровне. Она не может возникнуть, словно чудо, при переходе с одного уровня на другой".

В табл. 1 показана иерархия дисспативных структур, возникающих на различных масштабно-временных уровнях: от сотен нанометров до макроуровня — 1 мм. временные интервалы образования масштабных уровней ограничены отношением линейным масштабом уровня и Релеевской скоростью звука [1]. Литературные данные показывают [9], что нижний масштабный уровень образующегося фрактального кластера микротрещин определен их размером $1 \sim 10^{-9} - 10^{-7}$ м. Единственный механизм образования микротрещин в полях отрицательного давления это флуктуационный разрыв межатомных связей (термомеханический, квантовый). Флуктуационный разрыв межатомных связей приводит к необратимости на нано уровне.

Количественные характеристики диссипативных структур — фрактальная размерность, показатель Херста — на различных масштабных уровнях и количественные характеристики продуктов диспергирования имеют близкие значения для Си Al после воздействия релятивистских электронных пучков.

Большинство моделей перехода к турбулентному течению среды опирается на понятие бифуркации Хопфа, когда в системе возникает каскад бифуркаций, движение среды становится неустойчивым и переходит в хаотическое движение. На рис. 2а приведены растровые изображения картин гравитационного турбулентного перемешивания двух несжимаемых жидкостей разной плотности (три слоя на разной высоте от границы раздела жидкостей h_1, h_2, h_3), $h_3 > h_2 > h_1$ и фрактальные размерности 'микровихрей турбулентного перемешивания от их размеров D (рис. 26) [1, 13]. Количественные характеристики получены с применением интерактивной системы анализа изображений. Здесь D – размер областей одинаковой концентрации, $\langle D \rangle$ – средний размер областей одинаковой концентрации; N(D) – число областей размером D; $N(\langle D \rangle)$ – число областей раз-

Эти данные позволяют оценить степень взаимосвязи турбулентного течения с помощью фрактальной размерности d_f . Расчет дает примерно неизменную по ширине зоны турбулентного перемешивания фрактальную размерность $d_f \sim 1.5$, что согласуется с расчетными и экспериментальными данными работы [14].

Фрактальные размерности диссипативных структур, возникающих в процессе динамического разрушения конструкционных материалов на четырех масштабных уровнях при воздействии релятивистских электронных пучков приведены в табл. 2.

Результаты исследований показывают, что фрактальные размерности турбулентных течений сред: в металлических образцах с нанесенными возмущениями (см. табл. 1) $d_f \sim 1.69$, 1.62; размерность спектра пульсаций скорости течения газа, характеризующегося потоком энергии *E* по спектру масштабов $l(E \sim 1/l) d_f \sim 1.67$; размерность гравитационного турбулентного перемешивания двух несжимаемых жидкостей разной плотности $d_f \sim 1.5$ [1, 10].

Для различных видов турбулентностей основным вопросом является, каким образом возникает случайное движение среды, независящее от неконтролируемых флуктуаций и внешних шумов. После определенного числа бифуркаций поведе-



Рис. 2. Картины гравитационного турбулентного перемешивания двух несжимаемых жидкостей и результаты математической обработки [1, 13]. (а) Растровые изображения картин гравитационного турбулентного перемешивания двух несжимаемых жидкостей разной плотности (три слоя); (б) фрактальные размерности микровихрей турбулентного перемешивания, линии – метод наименьших квадратов.

ние неравновесной системы стремится к аттрактору [6, 8].

Переход ламинарного течения среды в турбулентное является критическим явлением [15]. Известным примером масштабно-инвариантного процесса является турбулентность, когда при течении среды появляются структуры с различными масштабами длины, времени и энергии, подчиняющихся универсальным законам подобия [8]. В настоящее время ясно, наличие крупных когерентных образований, случайно распределенных в пространстве и времени, являющихся характерной чертой многих, если не всех, турбулентных течений [8, 15]. На это указывают близкие значения фрактальных размерностей элементов диссипативных структур (см. табл. 2).

В настоящее время установлено явление самоорганизованной критичности, когда неравновесная динамическая система находится в критическом состоянии.

Концепция самоорганизованной критичности сводит множество сложных процессов к простой модели, содержащей степенную зависимость, когда некоторая величина N может быть представлена в виде степени другой величины S, $N(S) \sim S^{-\tau}$. График этой функции в двойном логарифмическом масштабе прямая линия. Масштабная инвариантность проявляется в том, что прямая в любой своей части не имеет никаких признаков, которые бы выделяли масштаб [16].

Приведем примеры универсального поведения неравновесных систем:возникновение хаотического поведения в электронно-дырочной плазме при переходе к турбулентности и конвектирующей жидкости при переходе к турбулентности путем удвоения периода.

На рис. 3 приведены результаты измерений колебаний тока I(t) для кристаллического Ge при двойной инжекции и параллельных электрическом и магнитном полях при увеличении напряжения от 6 до 10 В [17].

На рис. 4 приведен спектр частот конвектирующей жидкости при переходе к турбулентности [18].



Рис. 3. Результаты измерений колебаний тока I(t) для кристаллического Ge при двойной инжекции и параллельных электрическом и магнитном полях. Значение напряжения на рисунках возрастают от 6 до 10 B (a–B) [17].

Ранее было показано [1, 5, 10], что процесс динамического разрушения при отрицательном давлении протекает в рамках одного механизма уменьшения объема путем образования каскада центров разрушения. Показана возможность (на основе установленных релаксационных скейлинговых соотношений) прогнозирования поведения неисследованных металлов.

Учитывая универсальное поведение металлов в явлении динамического разрушения, спрогнозировано поведение металлов Pu, Th, U с применением установленного инварианта $[P_{\kappa p}(t)/\Gamma \rho (H + L_{\pi n})]^{\gamma}t =$ = const [1, 5, 10]. На рис. 5 приведены временные зависимости процесса динамического разрушения ряда металлов (экспериментальные данные) при воздействии релятивистских электронных пучков и спрогнозированные временные зависимости металлов Pu, Th, U (расчет). Темный маркер на графике экспериментальные данные работы [19].

На рис. 6 приведены временные зависимости процесса динамического разрушения ряда металлов (экспериментальные данные) при воздействии релятивистских электронных пучков и ла-



Рис. 4. Спектр частот конвектирующей жидкости при переходе к турбулентности [18].

зерного излучения (индекс ЛИ) в универсальных координатах: $\lg t$, $P/\Gamma\rho(H_3 + L_{пл})$. Темный маркер (*x*) на графике — экспериментальные данные работы — Pu [19].

Данные, приведенные на рис. 7, показывают аналогию механизма откольного расслоения в бронзе и металлическом Pu, связанного с образованием зоны откола при динамическом воздействии.

В работе [20] определены кинетика накопления радиационных и термодинамических дефектов в металлическом плутонии и рассмотрена проблема ускорения процесса старения металлического плутония (²³⁹Pu) путем легирования изо-



Рис. 5. Временные зависимости процесса динамического разрушения ряда металлов (экспериментальные данные) при воздействии релятивистских электронных пучков и спрогнозированные временные зависимости металлов Pu, Th, U (расчет) [11]. Темный маркер [19].

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022



Рис. 6. Временные зависимости процесса динамического разрушения ряда металлов при воздействии релятивистских электронных пучков и лазерного излучения в универсальных координатах: $\lg t, P/\Gamma\rho(H_3 + L_{\Pi\Pi})$.

топом 238 Pu, который имеет меньший период α -активности.

Если в ²³⁹Pu попытаться ввести ²³⁸Pu для ускорения процесса старения за счет увеличения скорости образования радиогенного гелия, то необходимо ускорить процесс образования дефектов надо увеличить температуру образца. Так энергия образования вакансии ~0.5 эВ, что потребует увеличения температуры на 50°С, энергия образования дивакансии ~1 эВ, что потребует увеличения температуры на 100–200°С. Но в одном образце невозможно создать спектр температур, поэтому на наш взгляд является проблематичным ускорение процесса старения ²³⁹Ри введением изотопа ²³⁸Ри.

Отметим, что, например, в выражении для внутренней энергии и энтальпии влияние вакансий точечных дефектов можно учесть с помощью аддитивного вклада соответствующей величины, характеризующей образование вакансий.

Для всех других термодинамических величин, таких как, теплоемкость, коэффициент теплового расширения, коэффициент сжимаемости, свойство аддитивности нарушается. Эти термодинамические величины имеют более сложный вид.

Таким образом, повышение температуры кристалла приводит к неаддитивному поведению ряда величин, характеризующих термодинамическое поведение кристалла в отличии от аддитивного поведения α — активности при введении ²³⁸Pu в кристалл ²³⁹Pu.

Приведенные математические оценки для времен релаксаций различных дефектов кристаллической решетки, определяющие процесс старения металлических актинидов сплава для различных эффективных температур, соответствующих различным скоростям накопления радиогенного гелия, показывают, что проведение процесса ускоренного старения металлического плутония путем увеличения концентрации изотопа ²³⁸ Рu, является неоднозначным.

В работе определены значения критической плотности поглощенной энергии, приводящей к



Рис. 7. Аналогия в механизмах откольного разрушения: (а) в бронзе, (б) в металлическом Ри [1, 19].

разрушению металлических образцов Th, U, Pu в диапазоне долговечности $t \sim 10^{-8}$ с

Ранее было показано [1, 5] что в явлении динамического разрушения металлов соблюдается концентрационный критерий, когда линейный масштаб элементов диссипативных структур и среднее расстояние между элементами диссипативных структур в широких масштабно-временных диапазонах подчиняется соотношению

$$C=\frac{r}{D},$$

где r — среднее расстояние между элементами диссипативных структур, D — размер элементов диссипативных структур, C — концентрация.

Переход неравновесной системы разрушаемого, диспергируемого тела с одного масшабно-временного уровня на следующий подчиняется концентрационному критерию, когда концентрация элементов диссипативных структур на любом масштабно-временном уровне достигает критического значения. Концентрационный критерий выражает масштабно — инвариантную природу диссипативных структур. Необходимо отметить, что каскады диссипативных структур на различных масштабно-временных уровнях являются фрактальными кластерами.

Из вышеизложенного следует, что масштабно – инвариантный концентрационный критерий укрупнения элементов диссипативных структур действует в масштабно — инвариантном ансамбле (кластере) элементов диссипативных структур. В рамках масштабно – инвариантного распределения элементов диссипативных структур в неравновесной системе и масштабно – инвариантного концентрационного критерия элементов диссипативных структур происходит катастрофическое развитие необратимых деструктивных процессов. Именно масштабная инвариантность каскада диссипативных структур фрактальных и перколяционных кластеров на различных масштабно-временных уровнях является признаком критического состояния неравновесной системы. Подобно переходу жидкость – газ, ферромагнитному переходу, переходу порядок — беспорядок в сплавах в критических точках, поведение, например, плотностной переменной описывается степенной зависимостью.

Самоорганизация системы в критическое состояние, когда существуют взаимодействия между элементами системы, распространяется на всю систему. При эволюции системы каждый масштабно-временной уровень достигает критического состояния. Результаты исследований, приведенные в работах [1, 5] показали, что эффекты самоорганизации сильно неравновесных систем могут происходить на масштабах от десятков нанометров до долей миллиметров и временных интервалах доли-десятки наносекунд. Установление универсальных релаксационных признаков, общих для неравновесных систем различной природы позволяет прогнозировать поведение неисследованных конденсированных сред в экстремальных условиях.

В работах [1, 5] приведена зависимость среднего расстояния (r) между элементами диссипативных структур от их среднего размера $\langle D \rangle$ для: каскад центров разрушения (воздействие релятивистских электронных пучков), Cu ($\Delta = 0.37$ мм), бронза $(\Delta = 0.3 \text{ MM}), \text{ Fe } (\Delta = 0.5 \text{ MM}) - \text{мезоуровень II};$ микротрещины: полимеры — мезоуровень I; каскад полос скольжения (ударно-волновое нагружение) Ті; шероховатость на поверхности (мезоуровень I) Cu; шероховатость на поверхности (наноуровень): Аи, Си; полосы скольжения в грани Си пирамидки (в верхней и нижней частях) – так называемый концентрационный критерий. Концентрационный критерий показывает, что процессы динамического разрушения и диспергирования конструкционных материалов являются аналогами критических явлений. Амплитудно-временные диапазоны неравновесных состояний для исследованных металлов $P \sim 1-20$ ГПа, $t \sim 10^{-6}-3 \cdot 10^{-10}$ с.

Масштабная инвариантность возникающих диссипативных структур указывает на то, что неравновесная система достигла критического состояния.

Свяжем сжимаемость $\chi = \frac{\partial V}{\partial P}$ образца нагруженного металла с плотностью центров разрушения *N*, используя парный потенциал $\varphi(r)$ взаимо-

действия атомов в кристалле.

Объемный модуль упругости выражается через вторую производную потенциала парного взаимодействия и межатомного расстояния *a*, см., например, [21]: $K \sim \frac{\varphi''(0)}{\alpha a}$ при $x \to 0$. Выражение для *K* в сечении тела можно выразить следующим образом $K = NK_{ar}$. $N \sim 1/a^2 -$ число атомов на см², $K_{ar} -$ "упругий модуль" на атом. Если в сечении тела (разрушаемого образца) существует каскад центров разрушения, то это означает, что в сечении имеется n_p разорванных межатомных связей. Следовательно, выражение для *K* можно представить:

$$K' = (N - n_p)K_{\rm at},\tag{3}$$

К' – объемный модуль "пористого" металла.

Число разорванных межатомных связей как функцию плотности N_P центров разрушения выразим следующим образом

$$n_{p} = \frac{N_{p}^{2/3}\overline{D}^{2}}{a^{2}},$$
 (4)

где N_p – объемная плотность центров разрушения,

D – средний размер центров разрушения

$$\overline{D} = \frac{\sum N_i(D_i)D_i}{\sum N_i(D_i)},$$
(5)

 $N_i(D_i)$ – число центров разрушения размером D_i .

Выражение для К' через N_p принимает вид

$$K' = K_{\rm ar} \left(\frac{1}{a^2} - \frac{N_p^{2/3} D^2}{a^2} \right) = \frac{K_{\rm ar}}{a^2} \left(1 - N_p^{2/3} \overline{D^2} \right).$$
(6)

Выражение для восприимчивости (сжимаемости)

$$\chi \sim \frac{a^2}{K_{\rm ar}(1 - N_p^{2/3}\overline{D^2})} \sim A \frac{1}{(1 - N_p\overline{D^2})},$$
(7)

А – коэффициент.

Это выражение показывает, что чем больше число центров разрушения N_p , тем больше χ .

Используя выражение для временной зависимости плотности центров разрушения *N*(*t*) [1, 5]

$$N(t) \sim B \left(1 - t/t_p \right)^{-1,2},$$
 (8)

B — коэффициент, и выражение (5), учитывая $\Sigma N_i = N_{\text{tot}}$ имеем

$$\overline{D} \sim N_{\text{tot}}^{-1}; \quad D^2 \sim N^{-2}. \tag{9}$$

Согласно выражению (7)

$$\overline{D}N^{2/3} = N^{-2}N^{2/3} \tag{10}$$

Тогда восприимчивость χ описывается выражением

$$\chi \sim \frac{1}{\left(1 - \frac{t}{t_p}\right)^{2.53}}.$$
(11)

На рис. 8 приведен вид восприимчивости на масштабе времени разрушения [5].

В работе [3] отмечено, что скорость звука в конденсированных средах вблизи критической точки стремится к нулю.

В низкочастотном пределе скорость звука V_0 имеет вид

$$V_0 = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)^{1/2} = V \left(-\frac{1}{\mu} \frac{\partial P}{\partial V}\right)^{1/2}; \qquad (12)$$

в критическом состоянии $\left(\frac{\partial P}{\partial V}\right) = 0$ [3].

Вышеизложенное показывает, что явление динамического разрушения является аналогом критических явлений, что определяет выбор математического аппарата для адекватного описания этого явления.

В неравновесных диссипативных системах в большинстве случаев для описания распределения элементов системы имеет место степенное



Рис. 8. Временная зависимость восприимчивости на масштабе времени разрушения.

распределение $f(x) \sim x^{-\alpha}$; x – размер элемента системы, α – параметр распределения.

Особенность таких распределений — отсутствие выделенного характерного размера, именно такие распределения характерны для масштабно-инвариантных множеств, например, для мультифракталов.

Степенные распределения являются статистическим выражением масштабной инвариантности. Распределение числа N(D) центров разрушения от размера имеет вид $N(D) \sim D^{-\alpha}$, распределение числа N(l) элементов шероховатости поверхности от их размера l имеет вид $N(l) \sim l^{-\beta}$, распределение продуктов диспергирования по размерам $N(d) \sim d^{-\gamma}$, распределение числа элементов шероховатости внутренней поверхности центра разрушения $N(l) \sim l^{-\beta}$, α , β , γ — параметры распределения. Приведенные примеры распределения элементов диссипативных структур в кластерах показывают, что кластеры являются фрактальными множествами [1, 5].

Процессы, происходящие в масштабно-инвариантных системах, устроены одинаково на всех уровнях организации физической системы. Здесь нет, как в простых системах выделенного масштаба, который бы отвечал за "основные процессы" к описанию которых можно было бы свести изучение свойств системы. Тем самым является

566

невозможным сведение системы к набору независимых объектов, что и означает ее сложность.

Масштабная инвариантность возникающих диссипативных структур указывает на то, что неравновесная система достигла критического состояния. Из вышеизложенного следует, что явление динамического разрушения и диспергирования металлов являются аналогами процессов, протекающих в критических точках, что и определяет применение определенного математического аппарата для описания указанных явлений. Реализация будущего состояния неравновесной диссипативной системы через последовательность бифуркаций делает эволюцию системы необратимой.

В физической энциклопедии [6] так дается определение критических явлений: "Критические явления — специфические явления, наблюдаемые вблизи критической точки жидкости или фазовых переходов 2-го рода, характеризуются ростом сжимаемости. Универсальность критических явлений проявляется в сходстве критических явлений в объектах разной природы... Масштабная инвариантность критических явлений по своей природе является кооперативными явлениями; они обусловлены свойствами всей совокупности частиц системы, а не индивидуальными свойствами частиц системы".

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показано, что Масштабная инвариантность свидетельствует об общности физических явлений на различных масштабных уровнях. При масштабной инвариантности рассматриваемое явление проявляет свойства автомодельности; изменяясь в пространстве и времени явление воспроизводит само себя в изменяющихся пространственных и временных масштабах. С математической точки зрения — это существование степенного соотношения межлу основными соотношениями рассматриваемого явления. Самовоспроизведение физических явлений при масштабной инвариантности позволяет моделировать и изучать явления в лабораторных условиях на определенных масштабно-временных уровнях и расширять полученные результаты на натурные явления [1, 5].

Примеры фрактальных и перколяционных кластеров каскадов диссипативных структур, образующихся в явлении динамического разрушения и диспергирования для различных металлов различной симметрии кристаллической решетки свидетельствует об их масштабной инвариантности и универсальном поведении. Пример роста сжимаемости на пороге макроразрушения, когда возникает связность в системе центров разрушения, позволяет утверждать, что исследуемые явления являются аналогами критических явлений. В работе спрогнозировано поведение металлического тория, плутония, урана в диапазоне неравновесных состояний $t \sim 10^{-6}-10^{-9}$ с, $E \sim 30-300$ Дж/г.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. *Kosheleva E.V., Punin V.T., Selchenkova N.I., Uchaev A.Ya.* General Regularities of Hierarchy Processes in Metals under Penetrating Radiation Pulses. 2015. Sarov: RF-NC-VNIIEF (in Russian)
- Kosheleva E.V., Sel'chenkova N.I., Uchaev A.Ya. // Phys. At. Nucl. 2021. V. 84. P. 2022–2033.
- 3. *Bazarov I.P.* Termodinamika [Thermodynamics. Tutorial for Universities. 2nd ed.]. 1976. Moscow: Vysshaya Shkola (in Russian).
- 4. *Stenly G.* Phase Transitions and Critical Phenomena. 1973. Moscow: Nauka (in Russian).
- Kosheleva E.V., Selchenkova N.I., Sokolov S.S., Trunin I.R., Uchaev A.Ya. // Proc. Int. Conf. 22nd Khariton Scientific Lectures. Supercomputer Simulation and Artificial Intellect. 2021. Sarov: RFNC-VNIIEF. P. 70–72 (in Russian).
- 6. Physics Encyclopedia. Ed. by Prokhorov A.M. 1988. Moscow: Sov. Entsyklopediya (in Russian)
- 7. *Prigozhin I., Nikolis G.* Exploring Complexity: An Introduction. 1989. New York: Freeman and Comp.
- Koverda V.P., Skokov V.N. // J. Appl. Mech. Tech. Phys. 2021. V. 62. P. 912.
- 9. *Stakhovskii I.R., Belousov T.P.* // Dokl. Akad. Nauk. 1996. V. 347. P. 252 (in Russian).
- Kosheleva E.V., Selchenkova N.I., Sokolov S.S., Trunin I.R., Uchaev A.Ya. // Phys. At. Nucl. 2020. V. 83 (11). P. 1585–1596.
- Il'kayev R.I., Punin V.T., Uchaev A.Ya., Novikov S.A., Kosheleva E.V., Platonova L.A., Selchenkova N.I., Yukina N.A. // Dokl. Akad. Nauk. 2003. V. 393 (3). P. 326– 331 (in Russian).
- 12. *Romashev R.V., Fedotov V.V.* // Zavod. Labor. 1975. No. 2. P. 229–232 (in Russian).
- Statsenko V.P., Yanilkin Yu.V., Rebrov S.V., Sin'kova O.G., Stadnik A.L., Selchenkova N.I., Uchaev A.Ya. // Vopr. At. Nauki Tekh., Ser.: Mat. Model. Fiz. Prots. 2002. No. 2. P. 18–29 (in Russian).
- Linden P.F., Redondo J.M., Youngs D.L. // J. Fluid Mech. 1994. V. 265. P. 97–124.
- 15. *Kolesnichenko A.V., Marov M.Ya.* Turbulence and Self-Organization. Problems of Simulation of Cosmic and Natural Environment. 2012. Moscow: Labor. Znaniy (in Russian).
- 16. *Bak P.* How Nature Works: Theory of Self-Organized Criticality. 2014. Moscow: Librokom (in Russian).
- 17. *Scho'll E.* Nonequilibrium Phase Transitions in Semiconductors: Self-Organization Induced by Generation and Recombination Processes. 2012. New York: Springer Science.

- 18. Feigenbaum M. // Usp. Fiz. Nauk. 1983. V. 141 (2). P. 343-374 (in Russian).
- 20. Seleznev A.G., Kosulin N.S., et al. // Radiokhimiya. 1995. V. 37. P. 488 (in Russian).
- 19. Golubev V.K., Sobolev Yu.S., Trunin I.R. // Probl. Prochn. 1998. No. 5. P. 100–105 (in Russian).
- 21. Shtremel' M.A. Strength of Allovs. Part I. Lattice Defects: Text Book for Higher School. 1999. Moscow: MISIS (in Russian).

On Critical Behavior of Metals, Actinides and Plutonium Metal on High-Intensity Exposure

N. I. Sel'chenkova¹ and A. Ya. Uchaev^{1, *}

¹The Russian Federal Nuclear Centre – All-Russia Research Institute of Experimental Physics (RFNC-VNIIEF), Sarov, Nizhny Novgorod oblast, 607188 Russia *e-mail: otd@expd.vniief.ru

Received June 28, 2022: revised June 28, 2022: accepted July 4, 2022

Abstract—The paper is devoted to establishing of general regularities of dynamic destructions (those of dynamic failure and dispersion) in metals, under high intensity external action in the dynamic range of non-equilibrium states $t \sim 10^{-6} - 10^{-9}$ s. Using a crystal lattice pair potential, there is determined an expression for compressibility (susceptibility) of a loaded sample that depends on failure centers density. Determining of common relaxation attributes for non-equilibrium systems allows prediction of unstudied systems' behavior. Predicted is behavior of plutonium metal, thorium, uranium in the range of non-equilibrium states $t \sim 10^{-6}$ - 10^{-9} s, $E \sim 30-300$ J/g using established temporal invariant of metals behavior under extreme conditions and experimental data on critical pressure, causing failure of plutonium metal.

Keywords; general regularities, dynamic destructions, prediction of unstudied systems' behavior, behavior of plutonium metal

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 533.9.082.5

ОПТИЧЕСКАЯ ЭМИССИОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ОБЛАСТИ ВЗАИМОДЕЙСТВИЯ ПЛАЗМЕННОГО ПОТОКА С ВОЛЬФРАМОВЫМ ОБРАЗЦОМ

© 2022 г. Д. И. Кавыршин^{*a, c, **}, В. П. Будаев^{*a, b*}, С. Д. Федорович^{*a*}, А. В. Карпов^{*a, b*}, В. Ф. Чиннов^{*c*}, М. В. Лукашевский^{*a*}, К. В. Чан^{*a*}, Е. А. Муравьева^{*a, c*}, А. С. Мязин^{*a, c*}, А. А. Коньков^{*a*}, К. А. Рогозин^{*a*}

^аНациональный исследовательский университет "МЭИ", Москва, 111250 Россия ^bНациональный исследовательский центр "Курчатовский институт", Москва, 123182 Россия ^cОбъединенный институт высоких температур РАН (OUBT PAH), Москва, 125412 Россия *E-mail: dimakav@rambler.ru Поступила в редакцию 30.05.2022 г.

После доработки 03.06.2022 г. Принята к публикации 17.06.2022 г.

В работе предложены методики обработки данных оптической эмиссионной спектроскопии при исследовании области взаимодействия гелиевой плазмы с плотностью основного газа [He] $\approx 10^{12} - 10^{14}$ см⁻³ и электронов $n_e \approx 10^{11} - 10^{13}$ см⁻³ с вольфрамовым образцом в установке ПЛМ, созданной для испытаний материалов плазменной нагрузкой. С использованием коронального приближения предложен метод определения температуры электронов. Для расчета необходимо выбирать отношение интенсивностей спектральных линий, наиболее чувствительное к электронной температуре, в рассматриваемом случае это является отношение интенсивности ионных линий к атомным. Сравнение отношения экспериментальных интенсивностей ионной линии He II 468.5 нм и ряда атомных линий He I с хорошо известными константами электронного возбуждения с рассчитанной зависимостью этого отношения от средней энергии электронов оказалось надежным методом спектрального определения электронной температуры замагниченной разреженной плазмы гелия. При экспериментальных условиях: концентрация атомарного гелия [He] ≈ 10¹⁴ см⁻³, ток разряда 2–10 A, падение напряжения 160-180 В, радиус и протяженность разряда 16 и 370 мм соответственно, измеренная с использованием двух синглетных и двух триплетных линий He I температура электронов составила $T_{a} = 2.4 \pm 0.2$ эВ. С учетом нелокальности функции распределения электронов по энергии (ФРЭЭ), сложного характера дрейфа и диффузии зарядов в скрещенных и неоднородных ЕХН-полях и др., соответствующую этой температуре среднюю энергию электронов $\overline{\epsilon} = (3/2)k T_e \simeq 3.6$ эВ можно считать оценкой снизу для энергии максвелловского участка ФРЭЭ исследуемой плазмы.

Ключевые слова: токамак, дивертор, плазменные испытания материалов, вольфрам, материалы термоядерного реактора, диагностика, спектроскопия, температура

DOI: 10.56304/S2079562922030198

1. ВВЕДЕНИЕ

Объектом спектроскопического исследования является плазма гелия низкого давления с магнитным удержанием на экспериментальном стенде МЭИ – "плазменном линейном мультикаспе" (ПЛМ) [1]. Данная установка создавалась с целью проведения испытаний макетов модулей дивертора токамака плазменной нагрузкой. Стенд является магнитной ловушкой с минимумом магнитного поля на оси, плазма в которой создается потоком электронов, движущихся от термокатода, представляющего собой танталовую спираль, к аноду. В установке удается создать стационарный столб гелиевой плазмы и поддерживать его в течение нескольких часов при постоянных параметрах разряда (давление в камере 10^{-1} — 10^{-3} торр, ток разряда 4—15 А, радиус разряда 15—17 мм, напряжение между катодом и анодом 100—200 В), обеспечивая тепловую нагрузку на поверхность вводимой в приосевую область мишени до 5 МВт/м².

Для создания локальных областей дополнительного перегрева поверхности испытуемого образца с целью моделирования условий интенсивного дугообразования на обращенных к плазме элементах первой стенки токамака на образец фокусировалось излучение периодического (частота следования импульсов ~10 Гц) Nd:YAG лазера с длительностью импульса ~10 нс и энергией, вкладываемой в импульс не менее 500 мДж.

КАВЫРШИН и др.



Рис. 1. Схема разрядной камеры и спектральных измерений.



Рис. 2. Спектр гелиевой плазмы при параметрах U = 182 B, I = 4.1 A.

1. ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Для диагностики параметров плазмы в области ее взаимодействия с испытуемым образцом на установке выполнялась регистрация оптических эмиссионных спектров в УВИ-диапазоне длин волн (250–1100 нм) со спектральным разрешением 0.2–1 нм с использованием четырехканального оптоволоконного спектрометра AvaSpec. Схема наблюдения показана на рис. 1. Наблюдения производились через кварцевое смотровое окно в стенке разрядной камеры перпендикулярно плазменному потоку, при этом световод спектрометра мог перемещаться вдоль окна. На рисунке 2 представлен спектр излучения плазмы при силе тока разряда I = 4.1 А и падении напряжения на разрядном промежутке U = 182 В на расстоянии 5 мм от поверхности образца.

Лазерный луч фокусировался на поверхности образца в области максимальной или близкой к максимальной плазменной нагрузки. Форма пят-



Рис. 3. Спектры невозмущенной плазмы и при лазерном облучении.



Относительная интенсивность

Рис. 4. Спектр излучения плазмы и образца в длинноволновой области.

на луча на поверхности — эллипс (малый диаметр 0.42 мм, большой диаметр 2.2 мм). Площадь пятна при фокусировке на поверхности — 0.725 мм². Лазерная нагрузка на поверхности образца могла достигать величины 7 МВт м⁻², что превышает пороговую величину плавления вольфрама. На рис. 3 и 4 представлены спектры излучения плазмы непосредственно вблизи поверхности образца. Воздействие лазера практически не оказывает влияния на интенсивность гелиевых линий, при этом на участке спектра, представленном на рисунке 3, заметно появление неразрешенных линий атомарного вольфрама W I.

На рис. 4 приведен длинноволновый участок спектра излучения из области взаимодействия испытуемого образца и плазменного потока в ко-

ординатах "Относительная интенсивность — длина волны" и координатах Вина [2]. На спектре, помимо атомарных линий гелия и линии водорода H-α серии Бальмера, можно заметить рост континуума с длиной волны, связанный с излучением нагретой поверхности образца.

Определенная по углу наклона описывающей этот участок роста в координатах Вина прямой температура составляет T = 1850 К. После выхода на стационарный режим работы установки был достигнут тепловой баланс и эта температура оставалась неизменной, воздействие лазерных импульсов также приводило лишь к кратковременному появлению локальных областей перегрева поверхности образца.

2. КОРОНАЛЬНОЕ ПРИБЛИЖЕНИЕ ДЛЯ ОПИСАНИЯ ИНТЕНСИВНОСТЕЙ СПЕКТРАЛЬНЫХ ЛИНИЙ

Для спектрального определения температуры и концентрации электронов в электроразрядной плазме низкого давления необходима модель плазмы, устанавливающая связь между измеряемой концентрацией возбужденных (излучающих) атомов (ионов), и параметрами исследуемой плазмы – ее температурами $(T_e \neq T_i \neq T_g)$, концентрациями n_e, N₀, N_i и другими параметрами [3, 4]. Такой, сравнительно простой, моделью описания разреженной плазмы является корональная модель [5, 6]. Ее основные допущения таковы: а) заселенность конкретного возбужденного уровня определяется равновесием между ударным электронным возбуждением с основного уровня и спонтанными переходами на нижние уровни; б) рождение и гибель заряженных частиц в объеме плазмы происходят в результате ударной ионизации с основного уровня и радиационной электрон-ионной рекомбинации; в) функция распределения электронов по энергиям $f(\varepsilon)$ считается максвелловской.

В "корональном" приближении ударная ионизация атома электронами, протекающая с эффективностью $\beta_i n_e N_0$ [7], уравновешивается не тройной, как в ЛТР плазме, а, из-за малости n_e , радиационной (или фото-) рекомбинацией $\alpha_{\phi p} n_e [N^+]$ на связанные состояния атома *m* с энергией связи E_m , сопровождаемой излучением фотонов с энергией $hv = \varepsilon + E_m$. Вследствие такого баланса зарядов устанавливается степень ионизации плазмы, не зависящая от n_e :

$$\frac{N^+}{N_0} = \frac{\beta_i(T_e)}{\alpha_{dp}(T_e)} \cong \frac{n_e}{N_0}.$$
 (1)

Зависимость от T_e (а точнее, от средней энергии электронов $\varepsilon = (3/2)kT_e$) отношения n_e/N_0 может быть выявлена из анализа процессов с участием ионов. Вследствие баланса зарядов (1) степень ионизации корональной плазмы оказывается круто возрастающей с температурой электронов функцией, в силу экспоненциальной зависимости от T_e константы скорости ионизации $\beta_i(T_e)$ и падающей с температурой скоростью рекомбинации $\alpha_{\phi p} \sim T_e^{-0.5}$. Интенсивность излучения атомной (и ионной) спектральной линии на переходе $m \rightarrow k$, с учетом констант спонтанного излучения возбужденных состояний A [8], дается выражением (для однородной плазмы протяженностью *L*):

$$J_{mk} = h v_{mk} A_{mk} N_m L = n_e N_0 K_{0m} \frac{h c A_{mk} L}{\lambda_{mk} \sum_{j < m} A_{mj}}.$$
 (2)

Константы скорости электронного возбуждения К для ряда излучающих состояний [9] атома и иона представлены на рисунке 5. Очень важную информацию мы получаем из анализа интенсивности наблюдаемой линии водородоподобного иона He II 468.5 нм с очень высокой энергией возбуждения $E_k = 51.0$ эВ, отвечающей переходу $4 \rightarrow 3$ серии Фаулера. Баланс возбужденных ионов He⁺(n = 4), обозначим = He⁺{4} в корональном приближении таков:

$$\frac{d\mathrm{He}^{+}\{4\}}{dt} = \mathrm{He}^{+}n_{\mathrm{e}}\langle vq_{14}^{+}\rangle -$$

$$-\mathrm{He}^{+}\{4\}\left\{A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43} + n_{\mathrm{e}}\sum_{1}^{s}\langle vq_{4s}\rangle\right\}.$$
(3)

Пренебрегая последним, "ударным" слагаемым в фигурных скобках по причине колоссальных констант спонтанного излучения ионов гелия $A_{42} \approx A_{41} \approx 10^9 \text{ c}^{-1}$ [8], получаем приближенное выражение для концентрации возбужденных ионов гелия $N^+(4)$ в стационарных условиях:

$$N^{+}(4) \simeq \frac{\mathrm{He}^{+} n_{\mathrm{e}} \langle v q_{14}^{+} \rangle}{(A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43})} = \frac{\mathrm{He}^{+} n_{\mathrm{e}} K_{14}^{+}}{(A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43})}.$$
 (4)

Здесь K_{14}^+ — константа скорости электронного возбуждения иона гелия на уровень n = 4, A_{41}^* эффективная вероятность оптического перехода в основное состояние 4—1 с учетом возможной реабсорбции излучения [7]. Интенсивность линии He II 468.5 нм составит:

$$\iint i_{\lambda} d\lambda dl = J^{468.5} = h v_{43} N^{+}(4) A_{43} L =$$

= $h v_{43} \text{He}^{+} n_{e} K_{14}^{+} \frac{A_{43} L}{(A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43})}.$ (5)

В однокомпонентной плазме $[He^+] \cdot n_e = n_e^2 -$ интенсивность ионной линии пропорциональна квадрату концентрации электронов и одновре-



Рис. 5. Константы скорости электронного возбуждения ряда линий Не I и линии Не II 468.5 нм

менно круто возрастает (~ K_{14}^+ , с порогом возбуждения 51 эВ) с ростом энергии электронов. Сравнивая интенсивность ионной линии гелия $J^+_{468,5}$ с интенсивностью одной из атомных линий J_{mk} и используя соотношения (1) и (5), получим выражение для их отношения

$$\frac{J_{468.5}^{+}}{J_{mk}} = \frac{n_{\rm e} {\rm He}^{+} K_{14}^{+}}{n_{\rm e} N_{0} K_{0m}} \frac{\lambda_{mk}}{468.5} \frac{A_{43} \sum_{j < m} A_{mj}}{(A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43}) A_{mk}} =$$

$$= C \Phi \left[\frac{A_{m1}^{*} ({\rm He})}{A_{41}^{*} ({\rm He}^{+})} \right] \left(\frac{K_{14}^{+}}{K_{0m}} \frac{\beta_{\rm i}}{\alpha_{\rm dp}} \right) (T_{\rm e}).$$
(6)

Использовав равенство (1), мы заменили отношение (n_e/N_0) отношением $\frac{\beta_i(T_e)}{\alpha_{dp}(T_e)}$, зависящим только от $T_{\rm e}$ (при максвелловской функции $f(\varepsilon)$). Оба сомножителя в круглых скобках (6) являются возрастающими с температурой функциями (благодаря большому различию энергий возбуждения иона и атома, а также росту β_i и падению α_{dv} с температурой, см. рис. 6 [10]).

По формуле вида (6) могут быть рассчитаны отношения интенсивности линии Не II к интенсивности любой из наблюдаемых линий He I с известными константами $K_{0m}(T_e)$. Используя в качестве отношения $\frac{J_{468.5}^+}{J_{mk}}$ экспериментально определенные относительные интенсивности ионной и атомной линий, и имея в численном виде температурную функцию $\left(\frac{K_{14}^+}{K_{0m}}\frac{\beta_i}{\alpha_{dpp}}\right)(T_e)$, мы распола-

гаем очень чувствительным методом определения температуры электронов T_e. Поэтому в качестве основного метода определения Те плазмы гелия низкого давления предлагается метод отношения интенсивности ионной линии He II 468.5 нм к интенсивностям ряда линий He I. как синглетных, так и триплетных, с хорошо известными константами скорости электронного возбуждения.

Программно рассчитанные температурные фак-

горы
$$\Pi = \left(\frac{K_{14}^+}{K_{0m}}\frac{\beta_i}{\alpha_{\phi p}}\right)(T_e)$$
, и отвечающие за радиаци-

функции $\Phi[A_i(\text{He}, \text{He}^+)] =$ онные переходы

 $A_{mk} \sum_{j \neq m} A_{mj}$, учитывающие поправки на $(A_{41}^* + A_{42} + A_{43})A_{mk}$

оптическую толщину переходов в основное состояние, в ожидаемом диапазоне температур $T_{e} =$ = 1–5 эВ позволяют получить температурный ход зависимости отношения интенсивности ионной линии He II 468.5 нм к интенсивности исследуемых (в нашем примере двух синглетных и двух триплетных) линий Не I:

$$\frac{J_{468.5}^{+}}{J_{mk}} = \frac{n_e \mathrm{He}^{+} K_{14}^{+}}{n_e N_0 K_{0m}} \frac{\lambda_{mk}}{468.5} \frac{A_{mk} \sum_{j \neq m} A_{mj}}{(A_{41}^{*} + A_{42} + A_{43}) A_{mk}} =$$

$$= \frac{\lambda_{mk}}{468.5} \Phi[A_j(\mathrm{He}, \mathrm{He}^{+})] \left(\frac{K_{14}^{+}}{K_{0m}} \frac{\beta_{\mathrm{i}}}{\alpha_{\mathrm{dp}}}\right) (T_{\mathrm{e}}).$$
(7)



Рис. 6. Коэффициенты скорости ионизации и рекомбинации Не и Н.



Рис. 7. Рассчитанные по (7) зависимости отношений интенсивности линии He II 468.5 нм к интенсивностям двух синглетных (396.4 и 501.6 нм) и двух триплетных линий (471.3 и 587.6 нм) атомарных линий гелия He I.

На рис. 7 представлены рассчитанные по (7) зависимости. Используя в качестве измеренной относительной интенсивности линий результат интегрирования по контуру регистрируемых интенсивностей линии Не II 468.5 нм и линий Не I, определяем значение температуры электронов

 $T_{\rm e}^{{}_{\rm эксп}}$, отвечающее равенству расчетного и экспериментального отношений интенсивностей:

$$\frac{J_{468.5}^{+}}{J_{mk}}(T_{e}^{\Im \kappa c \pi}) = \frac{\lambda_{mk}}{468.5} \Phi \left[\frac{A_{ml}^{*}(\text{He})}{A_{41}^{*}(\text{He}^{+})} \right] \left(\frac{K_{14}^{+}}{K_{0m}} \frac{\beta_{i}}{\alpha_{\phi p}} \right) (T_{e}).$$
(8)

Таблица	1	•
---------	---	---

Линия атома	396.4 нм	471.3 нм	501.6 нм	587.6 нм
Температура электронов, эВ	2.341	2.595	2.203	2.43

Примеры определения температуры $T_{\rm e}^{
m sccn}$ по равенству (8) при использовании двух синглетных (396.4 нм и 501.6 нм) и двух триплетных линий (471.3 нм и 587.6 нм) атомарного гелия представлены в табл. 1.

Обращает на себя внимание незначительный разброс значений температуры для всего набора линий Не I, а также минимальные значения $T_{\rm e}$, полученные для линий 396 и 501 нм, имеющих учтенную при обработке оптическую связь с основным состоянием атома. Подчеркнем при этом, что неучет реабсорбции в оценке их интен-

сивности приводит к снижению $T_{\rm e}^{{}_{\rm эксп}}$. Столь малый разброс измеренных температур обусловлен

экспоненциальным ростом отношения $\frac{K_{14}^+}{K_{0m}}(T_e)$,

вызванный большим различием энергий возбуждения атомов и ионов гелия, и потому слабой чувствительностью результата к погрешности измерения относительных интенсивностей.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применительно к разреженной электроразрядной гелиевой плазме с плотностью основного газа [He] $\approx 10^{12} - 10^{14}$ см⁻³ и зарядов $n_e \approx 10^{11} - 10^{13}$ см⁻³ с использованием коронального приближения изучены возможности спектрального определения основных параметров плазмы чистого гелия и гелия с малой металлической примесью.

Полученное в корональном приближении [5, 6] выражение (7) для отношения интенсивности ионной линии гелия $J_{
m 468.5}^+$ к интенсивности одной из атомных линий гелия J_{mk} позволяет определить температуру плазмы путем сравнения экспериментально измеренного отношения интенсивностей и результата расчета. Анализ показал, что при всей сложности состояния исследуемой плазмы: нелокальность ФРЭЭ, сложный характер дрейфа и диффузии зарядов в скрещенных и неоднородных ЕХН-полях и др., – излучающий ион гелия является высокочувствительным индикатором уровня средней энергии электронов $\overline{\epsilon}$ = $= 3kT_{e}/2 - ядра функции распределения. По$ этому использование отношения интенсивностей наиболее сильной в УВИ – диапазоне линии He II 468.5 нм и ряда линий He I с хорошо известными функциями электронного возбуждения [11] оказалось надежным методом спектрального определения электронной температуры замагниченной разреженной плазмы гелия. При следующих экспериментальных условиях: [He] $\approx 10^{14}$ см⁻³, ток разряда 4.1 А, падение напряжения 182 В, – измеренная с использованием двух синглетных и двух триплетных линий He I температура электронов составила $T_e^{cp} = 2.4 \pm 0.2$ эВ. Рассмотренный метод определения T_e малочувствителен к погрешностям определения других параметров плазмы, прежде всего концентрации и температу-

отношении (6) крутой зависимости
$$\left(\frac{K_{14}^+}{K_{0m}}\frac{\beta_i}{\alpha_{\rm dpp}}\right)(T_{\rm e})$$
.

ры атомов, вследствие доминирующей роли в со-

БЛАГОДАРНОСТИ

Спектроскопические измерения выполнены при поддержке гранта РНФ 21-79-10281 "Спектроскопия высокого разрешения для диагностики приповерхностной плазмы при взаимодействии мощных потоков неравновесной замагниченной плазмы со стенкой", разработка теоретического описания плазмы поддержана Министерством науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Государственного задания № 075-01056-22-00.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- Будаев В.П., Федорович С.Д., Мартыненко Ю.В., Лукашевский М.В., Губкин М.К., Карпов А.В., Лазукин А.В., Шестаков Е.А., Кавыршин Д.И., Рогозин К.С. // Ядерная физика и инжиниринг. 2018. Т. 9 (3). С. 283–294. https://doi.org/10.1134/S207956291803003X [Budaev V.P., Fedorovich S.D., Lukashevsky M.V., Gubkin M.K., Lazukin A.V., Kavyrshin D.I., Rogozin K.S. // Phys. At. Nucl. 2019. V. 82. P. 1281–1291. https://doi.org/10.1134/S1063778819090023].
- 2. *Магунов А.Н.* // Спектральная пирометрия. 2012. Москва: Физматлит.
- Korshunov O.V., Chinnov V.F., Kavyrshin D.I. // High Temp. 2019. V. 57. 147–155. https://doi.org/10.1134/S0018151X18060147
- Korshunov O.V., Chinnov V.F., Kavyrshin D.I. // High Temp. 2019. V. 57. P. 308–315. https://doi.org/10.1134/S0018151X19020081

- 5. *Lochte-Holtgreven W.* (ed.) Plasma Diagnostics. 1968. Amsterdam: North Holland.
- Ochkin V.N. Spectroscopy of Low Temperature Plasma. 2009. Weinheim: Wiley-VCH.
- Biberman L.M., Vorob'ev V.S., Yakubov I.T. Kinetics of Nonequilibrium Low-Temperature Plasmas. 1987. Berlin: Springer.
- 8. Kramida A., Ralchenko Yu., Reader J., NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.9). 2021. Gaith-

ersburg, MD: Natl. Inst. Standards Technol. https://physics.nist.gov/asd https://doi.org/10.18434/T4W30F

- 9. Cross Section Database for Helium. NIFS-DATA-059. 2000. Natl. Inst. Fusion Sci.
- Van Eden G.G., Kvon V., van de Sanden M.C.M., Morgan T.W. // Nat. Commun. 2017. V. 8. P. 192. https://doi.org/10.1038/s41467-017-00288-y
- 11. Pigarov A.Y. // Phys. Scr. 2002. V. 96. P. 16-31.

Optical Emission Spectroscopy for Studying the Region of Interaction between a Plasma Flow and a Tungsten Sample

D. I. Kavyrshin^{1, 3,} *, V. P. Budaev^{1, 2}, S. D. Fedorovich¹, A. V. Karpov^{1, 2}, V. F. Chinnov³,

M. V. Lukashevsky¹, Q. V. Tran¹, E. A. Muravieva^{1,3}, A. S. Myazin^{1,3}, A. A. Konkov¹, and K. A. Rogozin¹

¹Moscow Power Engineering Institute (MPEI), Moscow, 111250 Russia

²National Research Centre "Kurchatov Institute", Moscow, 123182 Russia

³Joint Institute for High Temperatures of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 125412 Russia

*e-mail: dimakav@rambler.ru

Received May 30, 2022; revised June 3, 2022; accepted June 17, 2022

Abstract—This work proposes methods for processing optical emission spectroscopy data obtained from the interaction region of helium plasma with the main gas concentration [He] $\approx 10^{12}-10^{14}$ cm⁻³ and electron density $n_e \approx 10^{11}-10^{13}$ cm⁻³ with a tungsten sample at the PLM installation created for studying materials under plasma impact. We proposed a method for determining the temperature of the electrons using the coronal approximation. The calculation is performed on spectral lines with intensity ratio most sensitive to electron temperature variation. For our case it is ion-to-atomic line intensity ratio. We have found that relation of experimental intensities of ion line He II 468.5 nm and a number of atom lines He I with well-known electron excitation constants to the calculated values of this relation for the average electron energy is a reliable method of spectroscopic determination of electron temperature of rarefied magnetized helium plasma. For these experiment conditions: helium concentration [He] $\approx 10^{14}$ cm⁻³, discharge current 2–10 A, voltage drop 160–180 V, discharge radius 16 mm and length 370 mm the value of electron temperature found from two singlet and two triplet He I lines was $T_e = 2.5 \pm 0.3$ eV. Taking into account nonlocality of electron energy distribution function (EEDF), complex nature of charge drift and diffusion in crossing and inhomogeneous electric and magnetic fields and other phenomena, the average electron energy of the Maxwell region of EEDF of the plasma under study.

Keywords: tokamak, divertor, plasma testing of materials, tungsten, fusion reactor materials, diagnostics, spectroscopy, temperature

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ, 2022, том 13, № 6, с. 577-587

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 539.1.073.7

ЧЕРЕНКОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ КАК СПОСОБ АНАЛИЗА ВЕЩЕСТВА

© 2022 г. В. А. Басков^{а, *}, В. В. Полянский^а

^аФизический институт имени П.Н. Лебедева РАН, Москва, 119991 Россия *E-mail: baskov@x4u.lebedev.ru Поступила в редакцию 08.07.2022 г. После доработки 08.07.2022 г.

Принята к публикации 18.07.2022 г.

С помощью разности спектров изучены световыходы черенковского излучения сложных и простых веществ, добавленных в жидкие радиаторы, в зависимости от их концентрации. Источником излучения являлись космические мюоны, а также позитроны с энергией 194 МэВ, генерируемые на электронном синхротроне С-25Р. Исследованы характеры спектров черенковского излучения простых веществ в зависимости от их положения в Периодической системе элементов. Сделаны оценки световыходов черенковского излучения от отношения атомных номеров Z к объему атомов этих веществ. По результатам работы сделано предположение о возможном использовании черенковского излучения типа веществ (черенковская спектрометрия).

Ключевые слова: черенковское излучение, поляризация, жидкий радиатор, черенковский детектор, спектр черенковского излучения, калибровка, космические мюоны, позитроны, разность спектров, периодическая система элементов

DOI: 10.56304/S2079562922030046

введение

Черенковское излучение (ЧИ) определяется когерентным излучением диполей, возникающих в результате поляризации атомов среды электрическим полем пролетающей заряженной частицы. Электроны, расположенные на внешних электронных оболочках атома, смещаются относительно ядра [1–4].

Можно предположить, что интенсивность и характер черенковского излучения должны определяться положением атома или атомным номером Z в Периодической системе. В этом случае характер ЧИ для каждого вещества должен быть оригинальным и соответствовать только данному веществу. По характеру ЧИ с учетом Z можно будет определять тип вещества или состав смеси веществ.

Для получения ответа на вопрос о зависимости черенковского излучения от атомного номера *Z* была выполнена данная работа.

1. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Схема экспериментальной установки представлена на рис. 1. Черенковским детектором (ЧД) являлась система из прозрачной емкости, в которой заливался жидкий радиатор, и набора из 6 фотоэлектронных умножителя (ФЭУ-85), "просматривавших" емкость. В качестве прозрачной емкости использовалась стеклянная или пластмассовая емкость с плотно завинчивающейся крышкой. Стеклянная емкость применялась в случае агрессивного радиатора, например, серной кислоты, а емкость из пластмассы в случае не агрессивного радиатора, например, водного или спиртового.

Пять ФЭУ сборки были расположены по кольцу радиусом 30 мм относительно центра сборки, в котором располагался шестой центральный ФЭУ. Между емкостью и фотокатодами ФЭУ располагались светофильтры. Последовательность расположения ФЭУ на кольце была следующая: $C_1 - ФЭУ$ без светофильтра (нумерация ФЭУ по направлению хода часовой стрелки); C_2 – красный (L = 600 нм, $L - длина волны в максимуме полосы пропускания); <math>C_3$ – желтый (L = 550 нм); C_4 – зеленый (L = 510 нм); C_5 – синий (L = 440 нм). На фотокатоде шестого или центрального ФЭУ (C_6) светофильтр отсутствовал.

В качестве заряженных частиц, формирующих ЧИ, в работе использовались одиночные космические мюоны и позитроны с энергией 194 МэВ [5, 6].

2. КАЛИБРОВКА ЧЕРЕНКОВСКОГО ДЕТЕКТОРА

Целью калибровки являлось сопоставление световыхода ЧИ, от исследуемого радиатора при



Рис. 1. Схема экспериментальной установки: S_1 и S_2 – триггерные сцинтилляционные счетчики; 1 – светонепроницаемый корпус детектора; 2 – черная бумага; 3 – прозрачная емкость; 4 – светонепроницаемая крышка, закрывающая корпус; 5 – жидкий радиатор; 6 – C_1 , ФЭУ-85 (светофильтр отсутствует); $7 - C_2$, ФЭУ-85 (светофильтр красный); $8 - C_3$, ФЭУ-85 (светофильтр зеленый); $9 - C_3$, ФЭУ-85 (светофильтр синий); $11 - C_6$, ФЭУ-85 (светофильтр отсутствует). На вставке: 1 – триггерный счетчик S_1 ; 2 – триггерный счетчик S_2 ; 3 – калибровочный сцинтиллятор; 4 – корпус детектора; 5 – набор ФЭУ-85.

прохождении заряженной частицы, со световыходом сцинтиллятора известной толщины.

Световыходы от сцинтиллятора или от ЧИ соответствует величине амплитуды сигнала каждого из 6 ФЭУ ЧД, зарегистрировавшего это излучение. Калибровка необходима для сравнения световыходов ЧИ различных жидкостных радиаторов (радиаторов с разными значениями зарядового числа Z) друг с другом, относя их к величине световыхода от калибровочного сцинтиллятора. В этом случае единицей измерения является энергия, зарегистрированная ФЭУ, в единицах энергии [МэВ].

С другой стороны, ЧИ в отличие от сцинтилляционного излучения является суммарной энергией некоторого числа черенковских фотонов, высветившихся в радиаторе при прохождении через него заряженной частицы. Если *i*-тая релятивистская частица регистрируется черенковским детектором, то независимо от химического состава вещества радиатора выражение для зарегистрированной энергии можно определить как $E_i = \varepsilon_i n_i$, где E_i –энергия, зарегистрированная детектором, ε_i является энергией единичного фотона, а n_i определяет число фотонов в данном взаи-

модействии заряженной частицы с радиатором. Поэтому, формально от единицы измерения энергии E_i ЧИ в мегаэлектронвольтах можно перейти к единице измерения в числе черенковских фотонов n_i в относительных единицах, поскольку $E_i \sim n_i$. Численно значение 1 МэВ = 1 отн. ед.

Калибровка ЧД выполнялась следующим образом: на внутреннюю сторону крышки пустой (жидкий радиатор отсутствует) прозрачной емкости, с помощью которой закрывалась емкость, помещался пластический сцинтиллятор размером 50×50 мм² и толщиной 1 см (вставка на рис. 1). Светофильтры с фотокатодов ФЭУ убирались. Далее происходил набор экспериментальной статистики прохождения заряженных частиц через сцинтиллятор с регистрацией сцинтилляционного света каждым ФЭУ сборки. При калибровки детектора на космических мюонах время набора составляло ~24 ч, за которое регистрировалось ~ 10^5 совпадений или триггеров $T = S_1 \times S_2$. При обработке экспериментального материала "включение" в триггер сигнала с одного из 6 ФЭУ, например, $T = (S_1 \times S_2) \times C_1$, где C_1 являлся сигналом с ФЭУ № 1 (рис. 1) понижало набранное число совпалений при калибровке до ~10⁴ совпадений.

Так как толщина сцинтиллятора 1 см, то при прохождении через него космического мюона в нем выделяется в среднем $\langle E \rangle = kl = 2$ [МэВ/см] 1 [см] = 2 [МэВ], где $k = \Delta E/\Delta x$ ($\Delta E/\Delta x$ – средняя величина ионизационных потерь электронов на единицу пути в детекторе; l – толщина сцинтилляционного детектора) [3]. Аналогичные спектры определялись и для остальных 4 ФЭУ ЧД (C_2-C_5). Калибровка ЧД на пучке позитронов ускорителя "Пахра" ФИАН происходила аналогичным образом.

3. ПРОЦЕДУРА ИЗМЕРЕНИЙ

Для определения характеристик ЧИ жидкостных радиаторов использовалась процедура вычитания спектров или иначе "*разностный метод*". Измерения проходили в два этапа. Перед измерениями из емкости убирался сцинтиллятор и на фотокатоды ФЭУ с C_2 по C_5 помещались светофильтры. В прозрачную емкость заливался жидкий радиатор (например, спирт), который назывался *опорным*. Далее производился набор экспериментальной статистики с использованием космических мюонов или позитронов. Спектр ЧИ, полученный для каждого из ФЭУ на этом этапе измерений, назывался $C_{m опорный}$, где m – номер ФЭУ.

На втором этапе измерений определялись спектры ЧИ заряженных частиц с добавкой в *опорный* радиатор некоторой концентрации *Р* исследуемого вещества (в граммах, миллилитрах, гранулах



Рис. 2. Спектры черенковского излучения космических мюонов (a, б, в) и позитронов с энергией 194 МэВ (г): спектр *опорного* радиатора (спирт, 96%) (a); спектр *опорного* радиатора + вещество (5% спиртовая настойка йода объемом P = 0.1 мл)) (б); разность спектров ((спирт + настойка йода) – (спирт) = (йод)) (в, г).

и т.д.), например, в спирт добавлялся йод. Спектр с добавкой вещества назывался C_m опорный + вещество.

Спектр ЧИ исследуемого вещества для каждого ФЭУ определялся как разность спектров, полученных во втором и первом этапах измерений. Формально эта разность определялась как C_m вещество = $= C_m$ опорный + вещество – C_m опорный (C_m в = C_m о + в – C_m о).

При вычитании спектров происходит переход от истинного числа событий, зарегистрированных при наборе экспериментальной статистики, к относительным единицам, при которых общее число событий в каждом из спектров нормируется на общее число зарегистрированных событий в соответствующем спектре. В этом случае, общее число событий в каждом спектре равно 1, а число событий в каналах уменьшаемого и вычитаемого спектров, а также спектра разности будет меньше 1.

"*Разностный метод*" исключает из конечного результата влияние прозрачной емкости, различных примесей в *опорном* радиаторе и другие факторы, связанные с системой "емкость — *опорный* радиатор". Кроме того, в конечном результате становиться не важным в каких единицах представлено количество вещества, добавленного в *опорный* радиатор, — в весовых (г), объемных (мл), количествах гранул или иных других.

При исследовании световыхода ЧИ в качестве опорных радиаторов, как и в работе [7], выбраны жидкости, которые не люминесцируют, для того, чтобы исключить передачу энергии от радиатора к находящемуся в них веществу. В качестве *опорных* радиаторов использовались азотная, серная, соляная, уксусная кислоты разной степени концентрации, дистиллированная вода и этиловый спирт.

4. РЕЗУЛЬТАТЫ

В работе представлены результаты исследований спектров, полученных с ФЭУ C_1 , который находился на кольце без светофильтра перед фотокатодом.

На рис. 2 представлены спектры *опорного* радиатора (спирт, 96%) (а), *опорного* радиатора + вещество (5% спиртовая настойка йода концентрацией P = 0.1 мл) (б) и разность спектров (спирт + + настойка йода) - (спирт) = (йод) (в). Заряженные частицы – космические мюоны.

Из рис. 2в видно, что световыход ЧИ йода в случае разности спектров ограничен величиной n < 1.3. Небольшое число событий также наблюдается в диапазоне световыхода $\Delta n = 5 - 9$. Дальнейшие исследования показали, что в этом диапазоне световыхода ЧИ наблюдается результат взаимодействия космических мюонов с веществом, в данном случае с йодом. Этот вывод был подтвержден исследованиями выхода ЧИ при

облучении *опорного* радиатора + вещество (5% спиртовая настойка йода различных концентраций) позитронами с энергией 194 МэВ. На рис. 2г представлен спектр *опорного* радиатора + вещество (5% спиртовая настойка йода концентрацией P = 0.1 мл) при облучении его позитронами с энергией 194 МэВ. На этом рисунке также наблюдается спектр световыхода ЧИ в диапазоне n < 1.3, но с отсутствием событий в области $\Delta n = 5-9$.

4.1. Относительный световыход черенковского излучения

Относительный световыход ЧИ исследуемого вещества $Y_{\rm ЧИ} = Y$ в данной работе был определен как сумма произведений числа событий в *i*-м канале спектра (рис. 2в и 2г) умноженного на число черенковских фотонов в этом канале:

$$Y = \sum_{i=1}^{k} (N_{(\text{o}+\text{B})i} / N_{\text{o}+\text{B}} - N_{\text{o}i} / N_{\text{o}}) n_i, \qquad (1)$$

где $N_{(o + B)i}$ и N_{oi} — число событий в *i*-х каналах спектров "опорный радиатор + вещество" и "опорный радиатор", соответственно; $N_{o + B}$ и N_o — полное число событий в спектрах "опорный радиатор + + вещество" и "опорный радиатор", соответственно; n_i — число черенковских фотонов в *i*-м канале спектра, k — максимальный канал суммирования, который определяет, величину энергии, выделяющуюся число в радиаторе, или число черенковских фотонов. Экспериментально определено, что достаточно использовать k = 10 отн. ед. или в энергетической шкале k = 10 МэВ. Если $Y \le 0$, то предполагалось Y = 0.

При обработке экспериментальных результатов минимальная ширина канала или бина в спектрах изменялась от 0.01 до 0.05 в шкале отн. ед. или от 0.01 до 0.05 МэВ в энергетической шкале.

Величина относительной ошибки $Y(\delta_Y)$, определяемой (1), складывается из ошибки энергетической калибровкой (δ_{en}), представленной на рис. 3, и статистической ошибкой (δ_{st}), связанной с величиной набора экспериментальной статистики, $\delta_{st}^2 = \delta_{st}^2 + \delta_{st}^2$

$$\delta_Y^2 = \delta_{en}^2 + \delta_{st}^2.$$

 δ_{en} составляет от 30 до 40% и определяется большим разбросом энерговыделения мюонов в сцинтилляторе (рис. 1). Разброс энерговыделения, в свою очередь, обусловлен большим разбросом углов входа мюонов в сцинтиллятор и неэффективностью светособирания сцинтилляционного света ФЭУ.

В работе используется процедура разности спектров, поэтому относительные статистические ошибки двух членов разности в формуле (1) складываются. При недостаточной величине статистики относительная ошибка оказывается значительна. Как указывалось выше, величина рабочей статистики при исследованиях световыхода ЧИ разных радиаторов на космических мюонах, составляла для каждой величины концентрации ~10⁴ событий/сутки, что оказалось недостаточной особенно при небольших концентрациях веществ в опорных радиаторах. Величина δ_ν при использовании космических мюонов, составила от 60 до 100%. При использовании пучка позитронов с энергией 194 МэВ величина рабочей статистики для каждой концентрации достигала ~10⁵ событий и δ_{v} составила от 20 до 30% также в зависимости от концентрации вещества в опорном радиаторе (рис. 3а (2)). Для получения аналогичных величин δ_{γ} , при использовании космических мюонов, время набора олной точки лолжно составлять не менее 7 сут, что значительно увеличивает общее время измерений. Было решено пожертвовать ухудшением точности измерения У ради сокращения общего времени выполнения работы.

Чтобы не перегружать рисунки величины ошибок на рис. 3, 7, 11 и 12, связанные с исследованием на космических мюонах, не показаны и линии, описывающие экспериментальные результаты, проведены для наглядности.

4.2. Зависимость световыхода черенковского излучения от концентрации вещества

В работе обнаружено, что для всех исследуемых веществ независимо от сложности химической формулы (Be, Cl, Cu, Zn, Cd, Fe, Pb, $C_{12}H_{22}O_{11}$ (сахар), NaCl (поваренная соль), $CuSO_4 \cdot 5H_2O$ (медный купорос), KCNS (калий роданистый), NiCl₂·6H₂O (никель двухлористый)) характер изменения величины световыхода ЧИ от концентрации приблизительно одинаков.

На рис. 3 представлены зависимости световыходов ЧИ от концентрации для нескольких простых и сложных веществ: (а) йода (I) (1), (б) железа (Fe), (в) роданистого калия (KCNS), (г) едкого натра (NaOH) и едкого калия (KOH), (д) сахара ($C_{12}H_{22}O_{11}$), (е) поваренной соли (NaCl), (ж) цинка (Zn), (з) керосина ($C_{12}H_{29}-C_{18}H_{38}$), (и) воды (H_2O) в этиловом спирте 96%. На всех рисунках видно, что при увеличении концентрации вещества имеет место рост световыхода ЧИ и достижение максимальной величины.

Аналогичные зависимости отмечались ранее [7], в том числе и П.А. Черенковым при исследовании свойств открытого им излучения [8].

4.3. Черенковское излучение сложного вещества

Можно предположить еще одно важное свойство ЧИ присущее всем радиаторам, независимо от состояния — газообразного, жидкого или твердого. Исходя из механизма формирование ЧИ,

ЧЕРЕНКОВСКОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ



Рис. 3. Зависимости световыхода ЧИ от концентрации веществ в *опорных* радиаторах: (а) 5% настойка йода (I) в этиловом спирте (96%) (1 – космические мюоны; 2 – электроны 194 МэВ); (б) железо (Fe) в азотной кислоте (HNO₃); (в) роданистый калий (KCNS) в воде; (г) едкий натр (NaOH) и едкий калий (KOH) в воде; (д) сахар ($C_{12}H_{22}O_{11}$) в воде; (е) поваренная соль (NaCl) в воде; (ж) цинк (Zn) в растворе воды (70%) и серной кислоты (30%); (з) керосин ($C_{12}H_{29}$ – $C_{18}H_{38}$) в воде; (и) вода (H_2O) в этиловом спирте.

снятие поляризации каждым диполем происходит "независимо" или с учетом связи атомов в молекулах, возможно, "квазинезависимо" друг от друга. Это означает, что ЧИ состоит из "смеси" черенковских излучений диполей отдельных веществ, входящих в состав радиатора. Таким образом, из общего спектра ЧИ сложного радиатора можно вычитать спектры ЧИ отдельных веществ или выделять спектры ЧИ нужного вещества. На рис. 4 представлены спектры ЧИ натрия (Na, Z = 11) (a), водорода (H, Z = 1) (б), кислорода (O, Z = 8) (в), полученные методом вычитания спектров. На рис. 4г представлен спектр ЧИ серы (S, Z = 16), полученный последовательным вычитанием из спектра ЧИ концентрированной серной кислоты H_2SO_4 двух спектров H и четырех спектров O, полученных ранее в экспериментальных исследованиях. Формально вычитания спектров можно записать, например, как:



Рис. 4. Спектры ЧИ, полученные методом вычитания спектров: (а) натрия (Na, Z = 11), (б) водорода (H, Z = 1), (в) кислорода (O, Z = 8), (г) серы (S, Z = 16).



Рис. 5. Спектры ЧИ соединения, полученные методом последовательного вычитания спектров: (a) калий роданистый (KCNS); (b) роданид (CNS = KCNS – K); (b) комплексная частица циано (CN = CNS – S).

(a) NaCl – Cl = Na; (б) NaOH – Na = OH и H_2O – OH=H; (в) OH – H = O. Далее можно получить спектры H + H = H_2 или O + O = O_2 и другие.

Надо отметить, что на рис. 4, 5 и 6 представлены средние значения числа черенковских фотонов *n*, определенные по результатам анализа соответствующих спектров. Если ЧИ формируется диполями веществ независимо друг от друга, то можно "формировать" ЧИ соединения, входящих в молекулу вещества радиатора, но которые в естественном виде могут не существовать, а только в составе молекул. В качестве примера из спектра ЧИ роданистого калия (KCNS) были получены спектры ЧИ соединения

582



Рис. 6. Спектры ЧИ меди, полученные из опорных радиаторов серной кислоты (H_2SO_4) (добавлено P = 0.001 г меди) (а) и соляной кислоты (HNO_3) (добавлено P = 0.006 г меди) (б).

роданида CNS = KCNS - K и комплексной частицы циано CN = CNS - S (рис. 5).

Примером "независимости" ЧИ от состава опорного радиатора может служить характер спектров ЧИ меди (Си, Z = 29) при использовании в качестве опорного радиатора серной (H_2SO_4) (добавлено P = 0.001 г меди) и соляной кислот (HNO₃) (добавлено P = 0.006 г меди) (рис. 6). Можно отметить, что спектры качественно одинаковы. Это свойство дает возможность определять наличие вещества независимо от состава опорного радиатора.

Линейчатость спектров связана с недостаточной экспериментальной статистикой, особенно при небольших концентрациях исследуемых веществ.

4.4. Зависимость черенковского излучения от длины волны спектра пропускания светофильтра и концентрации вещества

Зависимость световыхода ЧИ от длины волны спектра пропускания светофильтра, находящегося на фотокатоде ФЭУ (C_2-C_5), и концентрации 5% настойки йода в спирте представлена на рис. 7. Видно, что при небольшой концентрации (0.025 мл) световыход ЧИ слабо зависит от длины волны, но по мере увеличения концентрации до максимально исследованной (1.250 мл) световыход увеличивается в областях спектра близко к ультрафиолетовой (~440 нм, синий светофильтр) и близко к инфракрасной (~600 нм, красный светофильтр). Минимум световыхода ЧИ при всех исследованных концентрациях находится в области ~510 нм (зеленый светофильтр).

Из рис. 7 видно, как и в случае известных радиаторов (вода, плексиглас, фреон и т. д. [3, 9]), наи-

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

больший световыход ЧИ приходится на ультрафиолетовую часть спектра. Можно предположить, что подъем световыхода ЧИ в инфракрасной области связан с естественным цветом йода, длина волны которого близка длине волны пропускания светофильтра.

4.5. Характер спектров черенковского излучения от номера группы элементов периодической таблицы

В экспериментальных исследованиях ЧИ была обнаружена закономерность в изменении харак-



Рис. 7. Зависимость световыхода ЧИ от длины волны спектра пропускания светофильтра, находящегося на фотокатодах ФЭУ (C_2-C_5), и концентрации 5% настойки йода в спирте (концентрация 5% настойки йода: 1 - 0.025 мл; 2 - 0.100 мл; 3 - 0.500 мл; 4 - 1.250 мл).



Рис. 8. Спектры ЧИ веществ из групп I (а), IV (б), VI (в), VII (г), VIII (д).



Рис. 9. Спектры ЧИ бериллия Ве (а) и кадмия Cd (б).

тера спектра ЧИ в зависимости от номера группы элементов, в которой находится исследуемое вещество. На рис. 8 представлены спектры ЧИ для групп I (а), IV (б), VI (в), VII (г), VIII (д). Видно, что с увеличением номера группы или увеличением числа электронов внешней оболочки атома вещества, величина световыхода ЧИ уменьшается.

Обнаружено также, что для элементов одной группы, но разных периодов Периодической системы, характер спектров ЧИ сравнительно одинаков, однако численное значение световыхода ЧИ уменьшается с увеличением номера периода. На рис. 9 представлены спектры световыхода ЧИ для элементов из I группы для бериллия Be (2 период II ряда) (а) и кадмия Cd (5 период VII ряда) (б), соответственно. Несмотря на сравнительно одинаковый характер спектров ЧИ элементов разных периодов Периодической системы наблюдается уменьшение численных значений величины световыхода ЧИ при увеличении номера периода ($Y_{Be} = 1680$ отн. ед. и $Y_{Cd} = 445$ отн. ед.).

Обнаружено, что в зависимости от концентрации вещества в *опорном* радиаторе у некоторых веществ существенно меняется не только световыход ЧИ, но и характер спектра. На рис. 10 представлены спектры ЧИ цинка (Zn) (световыход

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022



Рис. 10. Спектры ЧИ ЦИНКА (Zn) при разных концентрациях (*P*) в опорном радиаторе: (a) *P* = 0.165 г; (б) *P* = 0.383 г.

ЧИ показан на рис. 3ж) при концентрации Zn в опорном радиаторе, состоящем из воды (70%) и серной кислоты (30%). При концентрации цинка P = 0.165 г (а) характер спектра совпадает с характером спектров I и III групп Периодической системы ("легкие" элементы), характер спектра при концентрации цинка P = 0.383 г (б) совпадает с характером спектров VII и VIII групп ("тяжелые" элементы). Соответственно и световыход ЧИ уменьшается с изменением характера спектра ($Y_{0.165 r} = 2080$ отн. ед., $Y_{0.383 r} = 811$ отн. ед.).

4.6. Зависимость световыхода черенковского излучения от отношения зарядового числа Z к объему атома

На рис. 11 представлено соответствие световыхода ЧИ (Y) элементов Периодической системы отношению Z/V (Z – зарядовое число атома, определяющего номер атома вещества в Периодической системе, V – объем атома, определяемый через расстояние до самой дальней из стабильных орбит электронов в электронной оболочке этого атома (V = $4/3\pi R^3$, R – эмпирический ковалентный радиус атома [пм] (1 пм = 10^{-12} м) [10])).

Из рис. 11 видно, что наибольший световыход ЧИ наблюдается у исследованных элементов, находящихся практически во всех группах, исключая группу II, и находящихся в начальных рядах — I, II и III, например, для натрия, калия, бора, серы, углерода, азота, кислорода и водорода.

На рис. 12а и 126, построенных на полученных экспериментальных данных и предположениях (разумных экстраполяциях), сделана попытка показать поведение световыхода ЧИ от положения элемента в Периодической системе элементов. Из рисунков видно, что наибольший световыход ЧИ присущ элементам, находящихся в III, IV и V группах и 2 и 3 подгруппах или II и III рядах (бор, углерод и азот — 2 подгруппа; алюминий, кремний и фосфор — 3 подгруппа).

Можно предположить, что световыход ЧИ, определяемый поляризацией электронов внешней оболочки атома электромагнитным полем пролетающей заряженной частицы, нарастает с увеличением числа электронов на внешней оболочки атома, достигая максимума в V группе II и III рядов. При дальнейшем увеличении номера ряда световыход ЧИ начинает уменьшаться, поскольку заполнение внешней оболочки атома приводит к более устойчивой конфигурации атомной



Рис. 11. Соответствие световыхода ЧИ (*Y*) элементов Периодической системы отношению Z/V (*Z* – зарядовое число атома, *V* – объем атома (*V* = 4/3 πR^3 , *R* – эмпирический ковалентный радиус атома [пм])).



Рис. 12. Зависимость световыхода ЧИ (*Y*) элементов Периодической системы от положения элемента в Периодической таблице: а – от номера группы и номера ряда; б – от номера группы для элементов, находящихся в II и III рядах. На рисунке: ●, ■ – значения световыхода ЧИ, полученные экспериментально; ○, □ – значения световыхода ЧИ, полученные из предположений.

оболочки к внешнему воздействию. Элементы, входящие в 0 группу (инертные газы), имеют минимальный световыход ЧИ.

Примерами применения веществ в экспериментальной физике, имеющих хорошие величины световыхода ЧИ, являются аэрогель на основе диоксида кремнезема (SiO₂) [11], фреон 114 (C₂Cl₂F₄), углекислый газ (CO₂), тетракис (диметиламино) этилен (TMAE) (C₂[N(CH₃)₂]₄) и другие [9]. Причем, в химических формулах этих веществ находятся элементы, представленные на рис. 126, с высокой величиной световыхода ЧИ (Si, C, N).

На основании результатов, представленных на рис рис. 2в, 2г и рис. 6, можно сделать вывод, что характер спектра ЧИ вещества не зависит от энергии и типе заряженной частицы, формирующей ЧИ. При изменении энергии частицы меняется только световыход. Отсюда можно предположить, что характер зависимости ЧИ от положения элемента вещества в Периодической системе также не зависит от энергии заряженной частицы.

Тем не менее, зависимость световыход ЧИ от положения элемента вещества в Периодической таблице и от энергии заряженной частицы необходимо изучать более детально.

5. ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ МЕТОДА

Чувствительность "разностного метода" исследования вещества, примененного в данной работе, составила не менее $2.5 \cdot 10^{-5}$. Она определялась минимальной дозой исследуемого вещества, добавляемой в опорный радиатор, находящийся в емкости объемом 1000 мл. Минимальная доза исследуемого вещества была определена ценой деления медицинского шприца 0.025 мл. Можно предположить, что чувствительность метода может быть выше, если уменьшить цену деления прибора, с помощью которого добавляют вещество в опорный радиатор, увеличить временя экспозиции и интенсивность пучка заряженных частиц. С увеличением времени экспозиции и интенсивности пучка заряженных частиц также будет увеличиваться и точность определения световыхода ЧИ.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе с помощью разности спектров получены световыходы черенковского излучения, возникающего под действием космических мюонов и позитронов с энергией 194 МэВ, сложных и простых веществ, добавленных в жидкие радиаторы, в зависимости от их концентрации. Результаты работы показали и подтвердили, что ЧИ присуще сложным веществам ($C_{12}H_{22}O_{11}$ (сахар), NaCl (поваренная соль), CuSO₄·5H₂O (медный купорос), KCNS (калий роданистый), NiCl₂·6H₂O (никель двухлористый)) и простым веществам (легким (Na, K) и тяжелым (Cu, Fe, Pb, Bi)).

Обнаружено, что характер световыхода ЧИ от концентрации вещества в *опорном* радиаторе не зависит от энергии и типа заряженных частиц. При изменении энергии частицы меняется только величина световыхода.

Обнаружено, что характер спектров ЧИ и величина световыхода при фиксированной энергии заряженных частиц зависит от номера группы и ряда в Периодической системе элементов. Наибольший световыход ЧИ приходится на элементы, находящиеся в IV, V и VI группах II и III рядов.

Метод разности спектров, примененный в работе для исследования ЧИ, можно использовать для определения степени загрязненности жидких радиаторов различными веществами как растворенными, так и химически провзаимодействовавшими. Метод можно использовать для определения степени загрязнений жидкостей мелкодисперсными механическими примесями (пластическими массами, различными нерастворимыми добавками, например, в питьевой или морской воде и.т.п.).

Результаты работы показывают, что черенковское излучение можно применять для определения типа вещества (*черенковская спектрометрия*), которая может найти применение в областях, связанных с гидрологией, экологией, геологией и других.

Использование космических мюонов, имеющих большую проникающую способность, дает возможность исследовать вещества с помощью регистрации ЧИ на значительных глубинах и жидкостных слоев большого объема.

Тем не менее, необходимо дальнейшие исследования световыхода ЧИ различных веществ в зависимости от энергии и типе заряженных частиц, концентрации веществ в *опорных* радиаторах, температуры радиаторов и т.д.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. *Cherenkov P.A., Tamm I.E., Frank I.M.* Nobel Lectures in Physics. 1960. Moscow: Fizmatlit (in Russian).
- Govorkov B.B. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2005. V. 553. P. 9. https://doi.org/10.1016/j.nima.2005.08.088
- 3. *Grupen C.* Particle Detectors. 1996. Cambridge: Cambridge Univ. Press.
- Bolotovskii B.M. // Phys. Usp. 2009. V. 52. P. 1099. https://doi.org/10.3367/UFNr.0179.200911c.1161
- Petrukhin A.A., Bogdanov A.G., Kokoulin R.P. // Phys. Part. Nucl. 2018. V. 49. P. 639. https://doi.org/10.1134/S1063779618040469
- Alekseev V.I., Baskov V.A., Dronov V.A., L'vov A.I., Krechetov Yu.F., Malinovsky E.I., Pavlyuchenko L.N., Polyansky V.V., Sidorin S.S. // Instrum. Exp. Tech. 2019. V. 62. P. 143. https://doi.org/10.1134/S0020441219020143
- 7. Chizhikova Z.A. // Opt. Spectrosc. 1959. V. 7. P. 223.
- 8. *Cherenkov P.A.* Doctoral (Phys. Math.) Dissertation. 1940. Moscow: Lebedev Phys. Inst. Acad. Sci. USSR. (in Russian).
- Tanabashi M. et al. (Particle Data Group) // Phys. Rev. D. 2018. V. 98. P. 030001. https://doi.org/10.1103/PhysRevD.98.030001
- 10. Slater J.C. // J. Chem. Phys. 1964. V. 41. P. 3199.
- Kharzheev Yu.N. // Phys. Part. Nucl. 2008. V. 39. P. 107. https://doi.org/10.1134/S1063779608010085

Cherenkov Radiation as a Method of Substance Analysis

V. A. Baskov^{1, *} and V. V. Polyansky¹

¹Lebedev Physical Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, 119991 Russia

*e-mail: baskov@x4u.lebedev.ru

Received July 8, 2022; revised July 8, 2022; accepted July 18, 2022

Abstract—Using the difference in spectra the dependences of the light outputs of Cherenkov radiation arising under the action of cosmic muons and positrons with an energy of 194 MeV complex and simple substances added to liquid radiators on their concentration are obtained. The characteristics of the Cherenkov radiation spectra of simple substances depending on their position in the Periodic table of elements are investigated. Estimates of the light outputs of Cherenkov radiation from the ratio of atomic numbers Z to the volume of atoms of these substances are made. Based on the results of the work an assumption was made about the possible use of Cherenkov radiation as a method for determining the type of substances (*Cherenkov spectrometry*).

Keywords: Cherenkov radiation, polarization, liquid radiator, Cherenkov detector, Cherenkov radiation spectrum, calibration, cosmic muons, spectrum difference, Periodic table of elements

ВЗАИМОДЕЙСТВИЕ ПЛАЗМЫ, ПУЧКОВ ЧАСТИЦ И ИЗЛУЧЕНИЯ С ВЕЩЕСТВОМ

УДК 539.17

ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТА ДОПЛЕРА НА СПЕКТРЫ ГАММА-КВАНТОВ ПРИ НЕУПРУГОМ РАССЕЯНИИ МЕЧЕНЫХ НЕЙТРОНОВ НА ЯДРАХ УГЛЕРОДА И АЗОТА

© 2022 г. С. Г. Беличенко^{*a*}, М. Д. Каретников^{*a*}, *, А. Д. Мазницин^{*a*}

^а Всероссийский научно-исследовательский институт автоматики им. Н.Л. Духова, Москва, 127055 Россия

**E-mail: bogolubov@vniia.ru* Поступила в редакцию 13.07.2022 г. После доработки 13.07.2022 г. Принята к публикации 18.07.2022 г.

Результатом измерений устройством с мечеными нейтронами является спектр гамма-квантов при неупругом рассеянии меченых нейтронов на ядрах вещества в элементарных объемах (вокселях), совокупностью которых можно представить исследуемый объект. Путем разложения исходного гамма-спектра на спектры, испускаемыми ядрами отдельных химических элементов, можно определить элементный состав объекта. Результаты анализа весьма чувствительны к относительной погрешности σW определения энергии гамма-квантов: при $\sigma W \approx 1\%$ погрешность определения относительного содержания некоторых элементов возрастает до 10%. Это приводит к необходимости учета эффекта Доплера, приводящего к смещению и уширению пиков гамма-спектра в зависимости от угла между направлениями движения меченых нейтронов и регистрируемых гамма-квантов. Наиболее сильно этот эффект проявляются для возбужденных энергетических уровней ядер с малым временем релаксации, в частности, для первого уровня ядра углерода (энергия гамма-кванта 4.438 МэВ) и второго уровня азота (2.313 МэВ). В работе приводятся аналитические оценки, результаты экспериментальных угловых зависимостей смещения и уширения пиков гамма-спектра из ядер углерода, азота и кислорода, измеренных на установке с мечеными нейтронами.

Ключевые слова: меченые нейтроны, эффект Доплера, нейтронный генератор, неупругое рассеяние нейтронов

DOI: 10.56304/S2079562922030058

введение

При бомбардировке дейтронным пучком тритиевой мишени нейтронного генератора одновременно испускаются быстрые 14 МэВ нейтроны и альфа-частицы, при этом энергия и направление движения рождающихся нейтронов и альфа-частиц однозначно связаны. Измеряя позиционно-чувствительным (многопиксельным) альфа-детектором координату сопутствующей нейтрону альфа-частицы и время ее регистрации, можно определять направление и время вылета ("метки") 14 МэВ нейтрона в направлении исследуемого объекта.

При неупругом рассеянии быстрых нейтронов на ядрах вещества возникает гамма-излучение, спектр которого является сигнатурным, т.е. уникальным для различных химических элементов. Расстояние L от мишени нейтронного генератора до места испускания гамма-кванта в результате неупругого рассеяния меченого нейтрона в исследуемом объекте можно определить путем измерения интервала Δt между временами регистрации гамма-кванта и сопутствующей меченому нейтрону альфа-частицы. Зная расстояние L и вектор движения меченого нейтрона относительно нейтронного генератора, можно определить пространственные координаты места, где произошло испускание зарегистрированного гаммакванта при неупругом рассеянии меченого нейтрона в исследуемом объекте (события). Основным критерием отбора событий являются наличие сигналов от альфа- и гамма-детекторов в заданном временном и амплитудном диапазоне при отсутствии наложенных сигналов. В ЭВМ передается информация о событии в виде многобайтного числа, содержащего коды адресов альфа- и гамма-детекторов, времени между регистрацией сигналов с альфа- и гамма-детекторов и амплитуды сигнала с гамма-детектора для обработки и визуализации.

Для анализа пространственного распределения элементного состава вещества в протяженных неоднородных объектах удобно условно разделить исследуемый объект на отдельные "эле-

ВЛИЯНИЕ ЭФФЕКТА ДОПЛЕРА

Изотоп	Сечение (<i>n</i> , <i>n</i> ', γ) реакции, мбн	Энергетические переходы, МэВ	<i>T</i> _{1/2} , фс	<i>Е</i> _γ , МэВ
¹² C	184	$4.439.82~(2^+) \to 0.0~(0^+)$	42.2	4.438
^{14}N	69	$2.312.798~(0^+) \rightarrow 0.0~(0^+)$	6.8	2.315593
	42	$5.105.89~(2^-) \rightarrow 0.0~(0^+)$	4350	5.10489
¹⁶ O	173	$6.129.89~(3^-) \rightarrow 0.0~(0^+)$	18400	6.12863
	53	$6.917.10~(2^+) \to 0.0~(0^+)$	4.7	6.9155
	73	$7.116.85(1^-) \to 0.0(0^+)$	8.3	7.11515

Таблица 1. Гамма-линии при неупругом рассеянии нейтронов на ядрах углерода ¹²С, азота ¹⁴N и кислорода ¹⁶O

ментарные" объемы (воксели). Каждый воксель может быть определен в системе координат подобной сферической, представляемой номером сработавшего пикселя альфа-детектора (задающего направление меченого нейтрона) и интервалом времени Δt , позволяющим определить расстояние от нейтронного генератора до объекта. В пределах вокселя элементный состав вещества считается однородным. Минимальный размер вокселя определяется угловым разрешением альфа- детектора и разрешением измерения времени альфа- гамма совпадений.

При проведении нейтронного анализа с мечеными нейтронами результатом измерений является спектр откликов гамма-детекторов. Окончательный вариант представляется в виде коэффициентов разложения k_i исходного спектра $\phi(E)$ на базисные спектры $\phi_i(E)$ интересующих химических элементов *i* в составе исследуемого объекта

$$\varphi(E) = \sum_{i=C,N,O...,n} k_i \phi_i(E) \quad [1].$$

Зависимость коэффициентов разложения k_i от погрешности σE калибровки носит нелинейный характер и уникальна для каждого химического элемента, поэтому неточная калибровка может привести к непредсказуемым результатам в оценке коэффициентов разложения и увеличить вероятность ошибок при проведения нейтронного анализа. Например, при относительной погрешности определения энергии пиков $\sigma E \approx 1\%$ точность определения k_i варьируется от 1 до 10% для разных химических элементов [2].

Погрешности при обработке спектров могут быть вызваны интегральной и дифференциальной нелинейностью амплитудного тракта, зависимостью измеренной амплитуды сигнала от температуры и скорости счета [3], влиянием загрузки на коэффициент усиления ФЭУ, влиянием температуры на световыход сцинтиллятора гамма-детектора. Они, как правило, обусловлены нерациональным выбором аппаратуры и схемотехнических решений и могут быть сведены до необходимого минимума введением поправочных коэффициентов при обработке результатов измерений и on-line калибровкой в процессе измерений. Физической причиной появления смещения и уширения пиков спектра гаммаквантов, испускаемых при неупругом рассеянии меченых нейтронов может быть эффект Доплера.

При неупругом рассеянии быстрого нейтрона на ядре часть энергии нейтрона передается ядру, которое ускоряется и переходит в возбужденное состояние. Максимальная скорость (относительно скорости света) ядер углерода и азота при начальной энергии нейтрона 14 МэВ составляет от 0.016 до 0.018 [4]. Если гамма-квант испускается при движении возбужденного ядра, то энергия гамма-кванта будет в лабораторной системе координат отличаться на энергию доплеровского смещения E', которая, в общем случае, зависит от относительной скорости β и массы M ядра, угла между направлениями движения ядра и гаммакванта φ :

$$E' = \frac{E(E+2Mc^2)}{2(E+Mc^2)}\sqrt{1-\beta^2}\frac{1}{1-\beta\cos\phi},$$
 (1)

где *с* – скорость света. Поскольку при неупругом рассеянии 14 МэВ нейтронов $\beta \ll 1$, уравнение (1) может быть переписано в более простом виде $E' = E(1 + \beta \cos \varphi)$, где $\beta = v/c$.

Энергетические уровни возбужденного ядра имеют различные квантовые состояния и разное время полураспада (релаксации) $T_{1/2}$ — от фемтосекунд до десятков пикосекунд. В табл. 1 [5] для примера представлены энергетические уровни, значения их времен жизни $T_{1/2}$ и соответствующие энергии E_{γ} испускаемых гамма-квантов углерода, азота и кислорода, используемые для нейтронного анализа.

Влияние эффекта Доплера на смещение и уширение пиков гамма-спектра зависит от времени полураспада $T_{1/2}$ возбужденного уровня и времени замедления T_3 ядра в среде. Время замедления T_3 ядер углерода, азота и кислорода с начальной скоростью β_{max} до скорости $\beta = 0.042-0.036$ (энергия 100 кэВ) в органических материалах составляет порядка 1 пс [4], поэтому гамма-линии 2.315593 МэВ (¹⁴N), 4.438 МэВ (¹²C), а также 6.9155 МэВ и 7.11515 МэВ (¹⁶O) (табл. 1) будут испытывать доплеровское уширение и смещение. Поскольку две последние линии практически не используются для нейтронного анализа в устройствах с мечеными нейтронами, в дальнейшем они рассматриваться не будут.

ИЗМЕРЕНИЕ ВЛИЯНИЯ ЭФФЕКТА ДОПЛЕРА НА ГАММА-СПЕКТРЫ ПРИ НЕУПРУГОМ РАССЕЯНИИ МЕЧЕНЫХ НЕЙТРОНОВ

Целью настоящих измерений является доказательство влияния эффекта Доплера на смещение некоторых пиков на гамма-спектрах, наблюдаемый в ряде экспериментах. и количественное определение смещения этих пиков от угла ф между направлениями движения меченых нейтронов и вылетом гамма-кванта. При экспериментальном измерении "тонкой" структуры гамма-спектров при неупругом рассеянии 14 МэВ нейтронов желательно использовать поток моноэнергетичных нейтронов с выделенным направлением движения без сопутствующего гамма-излучения, что крайне затруднительно при использовании обычных D-Т нейтронных генераторов. Например, аналогичные измерения [6] смещения пика 4.438 МэВ от угла Ф, в которых источником нейтронов служил традиционный D-T генератор А325 (производства MF Physics, США), количественно достаточно трудно интерпретировать, несмотря на исдетектора из особо пользования чистого германия и тщательную его коллимацию от гамма-нейтронного излучения.

Удобным инструментом для исследования рассеяния быстрых нейтронов на ядрах вещества являются устройства, реализующие метод меченых нейтронов. Они позволяют селектировать нейтроны, движущиеся в определенном направлении, что весьма важно для задания угла ф. Например, при использовании генератора ИНГ-27 с 256-пиксельным альфа-детектором с размером пикселя 2 × 2 мм можно определить направление движения меченого нейтрона с погрешностью около 0.04 рад.

Важной особенностью этого метода является дискриминация по времени сигналов, обусловленных взаимодействием с веществом "немеченых" нейтронов, не сопровождаемых регистрацией сопутствующих альфа-частиц, а также вторичного гамма-излучения. Фоновые сигналы, интерферирующие с сигналами от меченых нейтронов, в основном, обусловлены статистически случайными срабатываниями гамма-детектора от фонового излучения во временном окне регистрации альфа-гамма совпадений. Теоретически скорость счета гамма-квантов от меченых нейтронов в режиме совпадений (эффект) Q_e пропорциональна интенсивности I_n нейтронного гене-

ратора, скорость счета фона Q_b пропорциональна произведению квадрата интенсивности I_n на ши-

рину временного окна $I_n^2 \tau$. Таким образом, отношение эффект/фон можно сделать сколь угодно малым за счет снижения ширины временного окна τ и интенсивности нейтронного генератора I_n .

Дополнительным достоинством этого метода является возможность on-line калибровки гаммадетектора с помощью специальных материаловкалибраторов. При прохождении в них меченых нейтронов испускаются гамма-линии, которые легко интерпретируются на гамма-спектре и позволяют в процессе измерения определять калибровочные коэффициенты. События, соответствующие неупругому рассеянию меченых нейтронов на материалах-калибраторах, можно селектировать по направлению движения меченых нейтронов (пикселю сработавшего альфа-детектора) или по времени. Например, в работе [7] гамма-детекторы с кислородосодержашим сцинтиллятором (BGO, LYSO) устанавливали таким образом. чтобы на каждый из сцинтилляторов попадали меченые нейтроны, соответствующие периферийным пикселям альфа-детектора. Эти события хорошо выделялись на временном спектре, и калибровку проводили по суммарному пику 3.684 и 3.854 МэВ и пику 6.129 МэВ. Использование такой калибровки позволяет существенно улучшить стабильность во времени энергетической чувствительности гамма-детектора. Кроме того, калибровка гамма-детектора может производится с помощью эталонных радиоизотопов, в этом случае дополнительно наряду с событиями регистрируется гамма-спектр без совпадений, в котором присутствуют пики от этих радиоизотопов. Путем подбора потока гамма-квантов от радиоизотопа на гамма-детекторе, интенсивности I_n генератора меченых нейтронов и ширины временного окна τ можно добиться практически полного отсутствия пиков от эталонных радиоизотопов в гамма-спектре без совпадений.

В настоящей работе влияние эффекта Доплера на гамма-спектры при неупругом рассеянии меченых нейтронов исследовали на экспериментальном стенде, представленном на рис. 1, на базе генератора меченых нейтронов ИНГ-27 с 256-пиксельным альфа-детектором с размером пикселя 2 × 2 мм. Гамма-кванты регистрировали быстродействующим гамма-детектором производства фирмы Saint-Gobain на основе кристалла LaBr₃ размером диаметром 76 мм, высота 76 мм, сопряженным с быстродействующим ФЭУ R10233 фирмы Нататаtsu. Система высоковольтного питания и предварительный усилитель были интегрированы в гамма-детектор.

Система сбора данных МАВР [7] регистрировала события (альфа-гамма совпадения) и произ-



Рис. 1. Геометрия эксперимента.

водила предварительную обработку гамма-спектров. Основные характеристики МАВР следующие:

- разрядность оцифровки времени-10 бит;

– разрядность оцифровки амплитуды–14 бит;
 – интегральная нелинейность амплитудной шкалы – не более 0.2%;

– информация о событии передается в виде
 5-байтного числа;

 селекция событий по времени с дискретностью 0.09 нс;

 возможность одновременной регистрация спектров гамма-сигналов без совпадений одновременно с регистрацией событий;

 количество подключаемых гамма-детекторов-до 42;

 максимальный размер матрицы стрипового альфа-детектора—16 строк, 16 столбцов.

В качестве объектов исследования использовали пластиковые контейнеры размером $80 \times 80 \times 80$ мм, заполненные: графитом (для измерения выхода гамма-квантов при рассеянии нейтронов на углероде), меламином (рассеяние на азоте) и водой (рассеяние на кислороде). Для исследования зависимости смещения энергии гамма-квантов неупругого рассеяния от угла вылета относительно траектории меченых нейтронов гамма-детектор смещали в азимутальном направлении относительно объекта, сохраняя расстояние от объекта до кристалла гамма-детектора постоянным, а ось кристалла совпадала с направлением на объект.

Оп-line калибровку в процессе измерений производили по нескольким гамма-линиям. ³ При измерении гамма-спектра из ядер углерода (исследуемый пик 4.438 МэВ) гамма-детектор калибровали по гамма-линии кислорода 6.12863 МэВ (контейнер с водой размером 80 × 80 × 80 мм находился в потоке меченых нейтронов, а также гамма-линиям 1.173, 1.333 и суммарному пику 2.506 МэВ в гамма-спектре без совпадений от ра-

диоизотопа ⁶⁰Со, который устанавливали на корпусе гамма-детектора. При измерениях материалкалибратор располагали выше объекта в одной плоскости с ним по вертикали (рис. 1). События, соответствующие рассеянию меченых нейтронов на ядрах углерода и кислорода, селектировали по номерам сработавших пикселей. Гамма-спектр в режиме совпадений при неупругом рассеянии нейтронов на ядрах азота (исследуемый пик 2.316 МэВ) измеряли одновременно с калибровочным гамма-спектром без совпадений от радиоизотопа ⁶⁰Со с указанными выше гамма-линиями.

При разрядности оцифровки амплитуды сигнала 14 бит основная погрешность определения положения пика δ_x зависит от относительной ширины пика $\Delta E/E$ и количества отсчетов N [8] $\delta_x = \frac{\Delta E}{2.35E\sqrt{N}}$. Для достижения погрешности измерения положения пика меньше 0.1% с учетом максимальной ширины пика с учетом доплеровского уширения, эксперимент проводили до достижения количества отсчетов в области фотопика (FWHM) не менее 250 для определяемых и калибровочных гамма-пиков в режиме совпадений. При этом количество отсчетов для калибровочных пиков ⁶⁰Со было на несколько порядков выше.

Измеренные значения доплеровского смещения приведены на рис. 2, откуда видно смещение измеряемых пиков гамма-квантов с энергиями 4.438 МэВ при неупругом рассеянии нейтронов на углероде С $(n, n'\gamma)$ С и 2.316 МэВ на азоте N $(n, n'\gamma)$ N. Сдвиг пика 4.438 МэВ достаточно хорошо согласуется с результатами измерений, приведенных в работе [6]. Сдвиг пика 6.129 МэВ, не подверженного доплеровскому смещению, измерялся относительно пиков ⁶⁰Со. Видно, что с погрешностью не более 0.1% он достаточно стаби-



Рис. 2. Зависимость измеренного смещения энергии гамма-квантов неупругого рассеяния нейтронов на углероде 4.438 МэВ, азоте 2.316 МэВ и кислороде 6.129 МэВ от угла φ между векторами движения нейтрона и гамма-кванта.

лен, что подтверждает оцененную погрешность измерений других пиков.

На рис. За показаны теоретические значения энергетического разрешения пиков (аппроксимированные скейлингом $1/\sqrt{E}$) по пикам ⁶⁰Со и измеренные значения. Видно, что для пика 4.438 МэВ доплеровское уширение 2% превышает статистическую составляющую разрешения 1.5%, что в итоге обеспечивают погрешность 2.5%. Для метода меченых нейтронов, с точки зрения эффективности регистрации и экономических соображений, целесообразно использовать не LaBr₃, а BGO и LYSO сцинтилляторы, влияние на разрешение которых доплеровского уширения гораздо меньше (рис. 36), и им можно пренебречь при разложении измеренного спектра на базисные.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных исследований измерено смещение положения гамма-пиков с энергиями 4.438 и 2.316 МэВ при неупругом рассеянии нейтронов на ядрах углерода и азота в зависимости от угла между направлениями движения нейтронов и вылетом гамма-кванта. В установках с мечеными нейтронами сдвиг этих гамма-пиков проявляется при зондировании протяженных объектов, при многоуровневом расположении гамма-детекторов относительно нейтронного генератора, когда гамма-кванты попадают на детекторы под разными углами относительно потока меченых нейтронов. В прикладных задачах метода меченых нейтронов по разложению гаммаспектров на предварительно измеренные элементные сигнатуры доплеровское смещение можно учитывать путем создания набора отдельных элементных сигнатур для каждого рассматриваемого угла.

В настоящих экспериментах за счет on-line калибровки достигнута погрешность определения положения пиков не более 0.1%, являющаяся вполне приемлемой для оценки коэффициентов разложения гамма-спектра на элементные сигнатуры.



Рис. 3. Энергетическое разрешение (a) LaBr₃, (б) LYSO сцинтилляторов. Точки – измерения, сплошная линия – аппроксимация скейлингом $1/\sqrt{E}$.
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

- Bagdasaryan V.F., Batyaev S.G., Belichenko et al. // Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A. 2015. V. 784. P. 412. https://doi.org/10.1016/j.nima.2014.11.111
- 2. Carso C., Perot B., Bernard S. et al. // Nucl. Instrum.
- Methods Phys. Res., Sect. A. 2008. V. 588. Р. 307. *Цитович А.П.* Ядерная электроника. 1984. Москва:
- Энергоатомиздат.
- Barzilov A., Womble P.C. // J. Radioanal. Nucl. Chem. 2014. V. 301. P. 811. https://doi.org/10.1007/s10967-014-3189-8

- 5. Chart of Nuclides. Basic Properties of Atomic Nuclei. https://www.nndc.bnl.gov/nudat3/
- Whitfield D. Master's Theses and Specialist Projects. No. 1075. 2010. http://digitalcommons.wku.edu/theses/1075
- 7. Балыгин К.А., Климов А.И., Каретников М.Д. и др. // Ядерные информационно-измерительные технологии. 2014. № 4. С. 41.
- 8. *Gilmore R.* Practical Gamma-ray Spectrometry. 2nd ed. 2008. London: Wiley.

Impact of the Doppler Effect on the Spectra of Gamma Rays in Inelastic Scattering of Tagged Neutrons by Carbon and Nitrogen Nuclei

S. G. Belichenko¹, M. D. Karetnikov^{1, *}, and A. D. Maznitsyn¹

¹Dukhov All-Russian Scientific Research Institute of Automation, Moscow, 127055 Russia *e-mail: bogolubov@vniia.ru

Received July 13, 2022; revised July 13, 2022; accepted July 18, 2022

Abstract—The result of measurements by a device with tagged neutrons is the spectrum of gamma quanta during inelastic scattering of tagged neutrons on the nuclei of substance in elementary volumes (voxels). The object under study can be represented by a set of voxels. The elemental composition of an object can be determined by decomposing the original gamma spectrum into spectra emitted by the nuclei of individual chemical elements. The results of the analysis are very sensitive to the relative error σW in determining the energy of gamma rays: for $\sigma W \approx 1\%$, the error in determining the relative abundance of some elements increases to 10%. This leads to the need to take into account the Doppler effect, which causes a shift and broadening of the peaks of the gamma spectrum depending on the angle between the directions of motion of tagged neutrons and detected gamma rays. This effect manifests itself most strongly for excited energy levels of nuclei with a short relaxation time, in particular, for the first level of the carbon nucleus (the gamma-quantum energy is 4.438 MeV) and the second level of nitrogen (2.313 MeV). In this paper we present the analytical estimates, the results of experimental angular dependences of the shift and broadening of the gamma spectrum peaks from carbon, nitrogen and oxygen nuclei, measured by a setup with tagged neutrons.

Keywords: tagged neutrons, Doppler effect, neutron generator, inelastic neutron scattering

——— РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ ——

УДК 614.876

ДОЗА ОБЛУЧЕНИЯ НАСЕЛЕНИЯ В 2020 г.

© 2022 г. В. В. Костерев^{а, *}, А. Г. Цовьянов^b, А. Г. Сивенков^b, В. Е. Журавлева^b

^аНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия

^bГНЦ РФ Федеральный медицинский биофизический центр им. А.И. Бурназяна ФМБА России, Москва, 123098 Россия *E-mail: vvkosterev@mephi.ru

Поступила в редакцию 21.01.2022 г. После доработки 31.07.2022 г. Принята к публикации 02.08.2022 г.

Представлена информация о радиационной обстановке и дозах облучения населения, полученных в 2020 г. на территориях, обслуживаемых ФМБА России. Она получена на основе анализа, обработки и обобщения данных из радиационно-гигиенических паспортов предприятий и территорий, обслуживаемых ФМБА России, за 2020 г. Приведены значения средней годовой индивидуальной дозы облучения населения в 2020 г. за счет естественного и техногенно измененного радиационного фона. Представлена информация о структуре, количестве рентгенорадиологических процедур по видам и группам органов, коллективной и средней дозе облучения пациентов, полученной в 2020 г. на территориях, обслуживаемых ФМБА России. В количественном соотношении преобладают флюорограммы и рентгенограммы. Отмечается значительное уменьшение количества рентгенологических процедур в 2020 году по сравнению с 2018 г. прежде всего за счет снижения количества процедур флюорографии и рентгенографии. При этом по сравнению с 2018 г. коллективная доза существенно увеличилась, а средняя доза возросла, что связано со значительным ростом процедур компьютерной томографии. Отмечается существенный рост вклада компьютерной томографии в коллективную дозу по сравнению с предыдущими годами (более чем двадцатипроцентный рост с 2018 по 2020 г.) при ее незначительном вкладе по количеству процедур. Причина заключается в существенном росте томографических исследований в период пандемии коронавируса. Проведен анализ доз облучения, полученных при проведении флюорографии, рентгенографии, рентгеноскопии, томографии и прочих процедурах. Проведено сравнение дозовых характеристик при диагностических рентгенорадиологических процедурах в России и Франции.

Ключевые слова: радиационная обстановка, естественный радиационный фон, доза облучения, облучение населения, рентгенорадиологические процедуры, медицинское облучение, коллективная доза **DOI:** 10.56304/S2079562922030277

введение

Единая государственная система контроля и учета индивидуальных доз облучения граждан (ЕСКИД) создана в целях реализации статьи 18 Федерального закона Российской Федерации от 9 января 1996 г. № 3-ФЗ "О радиационной безопасности населения", а также во исполнение Постановления Правительства Российской Федерации от 16 июня 1997 г. № 718 "О порядке создания единой государственной системы контроля и учета индивидуальных доз облучения граждан". Составной частью ЕСКИД является Федеральный банк данных (ФБД) по индивидуальным дозам облучения персонала организаций и населения на территориях, обслуживаемых ФМБА.

Основными документами, характеризующими состояние радиационной безопасности организаций и территорий, являются радиационно-гигиенические паспорта организаций и территорий (РГП). Одним из основных показателей оценки радиационной безопасности являются индивидуальные и коллективные эффективные дозы облучения.

Приведены выборочные данные из радиационно-гигиенических паспортов предприятий и территорий, обслуживаемых ФМБА России – об уровнях содержания радионуклидов в воздухе санитарно-защитной зоны (СЗЗ) объектов, данные о наиболее представительных дозах облучения населения, полученные на основе анализа и обобщения информации за 2020 год, содержашейся в Федеральном банке данных индивидуальных доз облучения. Исходным материалом для анализа облучения послужили поступившие в ФГБУ ФМБЦ им. А.И. Бурназяна ФМБА России годовые формы федерального государственного статистического наблюдения, утвержденные постановлениями Федеральной службы государственной статистики Российской Федерации (Росстата) от 18.11.2005 г. № 84: № 3-ДОЗ "Сведения о дозах облучения пациентов при проведении рентгенорадиологических исследований" и № 4-ДОЗ "Сведения о дозах облучения населения за счет естественного и техногенно измененного фона".

1. РАДИАЦИОННАЯ ОБСТАНОВКА НА ТЕРРИТОРИЯХ, ОБСЛУЖИВАЕМЫХ ФМБА РОССИИ

Анализ проводился на основе обобщения информации за 2020 г. из радиационно-гигиенических паспортов предприятий и территорий, обслуживаемых ФМБА России. На указанных территориях контролируется содержание основных дозообразующих радионуклидов: ⁹⁰Sr, ¹³¹I. ²²⁶Ra, а также альфа и бета-компоненты радиоактивности в объектах внешней среды (воздух, вода). В табл. 1 представлены выборочные данные по объемной активности радионуклидов в воздухе санитарно-защитной зоны за 2020 г. для некоторых из контролируемых территорий. Анализ. учитывающий все представленные данные. позволяет констатировать удовлетворительную, в целом, радиационную обстановку на территориях, обслуживаемых ФМБА России. Ни в одном из контролируемых регионов не наблюдалось превышения предельно допустимых уровней радиоактивного загрязнения воздуха и воды открытых водоемов в санитарно-защитной зоне и зоне наблюдения.

2. ДОЗА ОБЛУЧЕНИЯ НАСЕЛЕНИЯ ЗА СЧЕТ ЕСТЕСТВЕННОГО И ТЕХНОГЕННО ИЗМЕНЕННОГО РАДИАЦИОННОГО ФОНА

При анализе использованы отчеты по форме государственного статистического наблюдения № 4-ДОЗ "Сведения о дозах облучения населения за счет естественного и техногенно измененного фона" за 2020 г., полученные в 2021 г. от 26 организаций ФМБА России.

Информация по радиационной обстановке в ряде населенных пунктах (включая пункты с минимальным и максимальным значениями доз) представлена в табл. 2. Годовая эффективная доза по всем пунктам варьируется от 1.63 мЗв (г. Димитровград) до 6.40 мЗв (г. Железногорск).

В табл. 3 даны значения средней годовой индивидуальной дозы облучения населения в 2020 г. за счет естественного и техногенно измененного радиационного фона. Анализ данных показывает, что при средней дозе природного облучения на одного жителя в 2020 г., равной 2.98 мЗв/год, вклад дозы внутреннего облучения за счет ингаляции изотопов радона составляет 55%, доля внешнего облучения природными источниками земного происхождения (ВО) составляет 21%, вклад космического излучения — 14%, а на долю всех остальных источников приходится 10%. Можно отметить незначительное снижение средней дозы по сравнению с 2013 г. (2.98 мЗв по сравнению с 3.19 мЗв) [1] прежде всего за счет уменьшения компоненты внешнего облучения с 0.87 мЗв в 2013 г. до 0.62 мЗв в 2020 г. Остальные компоненты индивидуальной дозы практически не изменились.

Сравнивая данные по радиационной обстановке и дозовым нагрузкам в РФ, полученным в 2020 г., с аналогичными данными 2011 г. [2], можно сделать вывод, что радиационная обстановка на объектах и территориях, обслуживаемых ФМ-БА, в целом мало изменилась по отношению к таковой в 2011 г.

3. ДОЗА ОБЛУЧЕНИЯ ПАЦИЕНТОВ ПРИ ПРОВЕДЕНИИ МЕДИЦИНСКИХ РЕНТГЕНОРАДИОЛОГИЧЕСКИХ ИССЛЕДОВАНИЙ

При анализе использованы отчеты по форме государственного статистического наблюдения № 3-ДОЗ "Сведения о дозах облучения пациентов при проведении медицинских рентгенорадиологических исследований" за 2020 г., полученные в 2021 г. от 227 медицинских учреждений ФМБА России.

Суммарное количество всех диагностических рентгенорадиологических процедур в медучреждениях ФМБА России за 2020 г. составило 5383553 ед. (табл. 4). Для сравнения, в 2011 г. количество всех диагностических рентгенорадиологических процедур в медучреждениях ФМБА России составило 5848537 ед. [2].

В количественном соотношении преобладают флюорограммы органов грудной клетки (1665932 ед.), рентгенограммы челюстно-лицевой области (845468 ед.), рентгенограммы органов грудной клетки (742347 ед.) и конечностей (665258 ед.). Наибольшее количество рентгенорадиологических процедур приходится на органы грудной клетки (2564805 ед.), конечности (666804 ед.) и молочную железу (629103 ед.).

Наибольший вклад в коллективную дозу пациентов (табл. 5) вносят исследование органов грудной клетки (1243.35 чел-3в) – более чем двукратный рост по сравнению с 2011 г. (567.65 чел-3в) и более чем трехкратный рост по сравнению с 2013 г. (399.71 чел-3в) [3], а также органов пищеварения (322.61 чел-3в) – 427.89 чел-3в в 2011 г. По сравнению с 2018 г. коллективная доза увеличилась с 1512.88 чел-3в до 2411.87 чел-3в, а средняя доза по всем процедурам возросла с 0.26 до 0.45 мЗв что связано с существенным ростом процедур компьютерной томографии (с 186723 до 348773). При этом произошло значительное уменьшение количества рентгенологических процедур в 2020 г. по

Таб дик	лица 1. Уровни (о-биологически)	содержания радион м агентством, средн	іуклидов в воз няя/максимал	здухе санитарно-заш ьная, Бк/м ³	цитной зоны предпр	иятий на территорі	иях, обслуживаемых	с Федеральным ме-
	Субъект				Санитарнс	-защитная зона		
Ž	Российской Федерации	Территория	¹³⁷ Cs	⁹⁰ Sr	I ^{IEI}	²²⁶ Ra	Бета-компонента	Альфа- компонента
-	Архангельская область	г. Северодвинск	$2.90 \cdot 10^{-6} / 1.50 \cdot 10^{-5}$	$\frac{4.50\cdot 10^{-7}}{3.30\cdot 10^{-6}}$	Не проводилось	Не проводилось	$1.36 \cdot 10^{-6} /$ $1.50 \cdot 10^{-5}$	Не проводилось
5	Воронежская область	г. Нововоронеж	$3.88 \cdot 10^{-6}/$ $6.60 \cdot 10^{-6}$	Не проводилось	Не обнаружен	Не проводилось	$8.01 \cdot 10^{-7}/$ $6.60 \cdot 10^{-6}$	Не проводилось
ŝ	Калужская область	г. Обнинск	$1.76\cdot 10^{-6}/$ $2.70\cdot 10^{-6}$	$3.50\cdot 10^{-5}/$ $3.80\cdot 10^{-5}$	Не проводилось	Не проводилось	$1.84 \cdot 10^{-5}/$ $3.80 \cdot 10^{-5}$	Не проводилось
4	Красноярский край	г. Железногорск	$2.20\cdot 10^{-6}/$ $2.20\cdot 10^{-6}$	$2.00 \cdot 10^{-5}/$ $2.00 \cdot 10^{-5}$	Не проводилось	Не проводилось	$2.14 \cdot 10^{-4}/$ $2.14 \cdot 10^{-4}$	$1.00\cdot 10^{-4}/$ $1.00\cdot 10^{-4}$
5	Курская область	г. Курчатов	$1.10 \cdot 10^{-5}/$ $3.30 \cdot 10^{-5}$	$9.20\cdot 10^{-10}/$ $2.0\cdot 10^{-10}$	$8.80 \cdot 10^{-6}/$ $3.20 \cdot 10^{-5}$	$2.20 \cdot 10^{-6} / 5.30 \cdot 10^{-6}$	$6.6 \cdot 10^{-6} / 3.30 \cdot 10^{-5}$	$2.20 \cdot 10^{-6} / 5.30 \cdot 10^{-6}$
9	Ленинград- ская область	г. Сосновый Бор	$4.96\cdot 10^{-5}/$ $1.09\cdot 10^{-4}$	Не проводилось	Не проводилось	Не проводилось	$1.27 \cdot 10^{-4}/$ $7.84 \cdot 10^{-4}$	Не проводилось
7	Московская область	г. Сергиев Посад	$7.01 \cdot 10^{-6}/$ $2.00 \cdot 10^{-5}$	$9.64 \cdot 10^{-6}/$ $4.60 \cdot 10^{-5}$	Не проводилось	Не проводилось	$8.33 \cdot 10^{-6}/$ $4.60 \cdot 10^{-5}$	Не проводилось
~	Саратовская область	г. Балаково	$4.35 \cdot 10^{-7}/$ $1.48 \cdot 10^{-6}$	Не проводилось	$3.00\cdot 10^{-7}/$ $3.00\cdot 10^{-7}$	Не проводилось	$3.45 \cdot 10^{-7}/$ $1.48 \cdot 10^{-6}$	Не проводилось
6	Челябинская область	г. Озерск	$1.10\cdot 10^{-2}/$ $1.30\cdot 10^{-1}$	$6.80\cdot 10^{-3}/$ $3.60\cdot 10^{-1}$	Не проводилось	Не проводилось	$8.90 \cdot 10^{-3}/$ $3.60 \cdot 10^{-1}$	$1.80\cdot 10^{-4}/$ $1.60\cdot 10^{-3}$

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ

том 13

№ 6

2022

596

КОСТЕРЕВ и др.

N⁰	Название населенного	Годовая эффективная доза, мЗв/год							
п/п	пункта	K-40	Космика	BO	Радон	Вода	Пища	Суммарная доза	
1	г. Сосновый Бор	0.17	0.4	1.1	1.44	0.01	0.73	3.85	
2	г. Новоуральск	0.17	0.4	0.55	2.24	0.01	0.12	3.49	
3	г. Заречный	0.17	0.4	0.47	3.56	0.01	0.12	3.04	
4	г. Нововоронеж	0.17	0.4	0.61	0.84	0.01	0.12	2.15	
	г. Зеленогорск	0.17	0.4	0.89	1.41	0.01	0.12	3.0	
6	ЗАТО Шиханы	0.17	0.4	0.5	1.44	0.01	0.12	2.64	
7	г. Железногорск	0.17	0.4	1.11	4.60	0.01	0.12	6.40	
8	г. Северск	0.17	0.4	0.54	1.02	0.01	0.16	2.31	
9	г. Лесной	0.17	0.4	0.68	2.47	0.01	0.12	3.85	
10	г. Димитровград	0.17	0.4	0.39	0.54	0.01	0.12	1.63	
11	г. Полярные Зори	0.17	0.4	0.68	2.11	0.01	0.12	3.49	
12	г. Снежногорск	0.17	0.4	0.49	1.69	0.01	0.12	2.88	
13	г. Сосновый Бор	0.17	0.4	1.31	1.21	0.01	0.12	3.22	
14	г. Курчатов	0.17	0.4	0.69	1.7	0.02	0.12	3.10	
16	г. Красноармейск	0.17	0.4	0.85	0.54	0.01	0.12	2.09	

Таблица 2. Радиационная обстановка в населенных пунктах за 2020 г.

Таблица 3. Структура средней индивидуальной дозы населения за счет естественного и техногенно измененного радиационного фона в 2020 г.

Вид облучения	K-40	Космика	BO	Радон	Пища	Вода	Суммарная доза
Индивидуальная годовая доза, мЗв	0.17	0.41	0.62	1.63	0.13	0.02	2.98
Вклад в дозу, %	5	14	21	55	4	1	100

сравнению с 2018 г. с 6462824 до 5383553 прежде всего за счет снижения количества процедур флюорографии и рентгенографии [4].

Проведен анализ доз облучения за счет медицинских процедур в медицинских учреждениях ФМБА России в 2020 г. Средняя доза составила соответственно:

по флюорографическим процедурам – 0.05 (0.12 мЗв в 2011 г.),

по рентгенографическим процедурам – 0.12 (0.21 мЗв в 2011 г.),

по рентгеноскопическим процедурам – 4.03 (5.79 мЗв в 2011 г.),

по компьютерной томографии — 5.15 (5.65 мЗв в 2011 г.),

по прочим исследованиям — 3.14 (0.05 мЗв в 2011 г.).

Наибольшие средние дозы формируются при компьютерной томографии — 5.15 мЗв и рентгеноскопии — 4.03 мЗв.

В табл. 6 приведена структура медицинского облучения пациентов в учреждениях ФМБА России в 2020 г., а в табл. 7 в 2018 г. [4]. Рентгенография обеспечивает максимальный вклад по количеству процедур, а компьютерная томография по дозе. Виден существенный рост вклада компьютерной томографии по коллективной дозе с 54.38% в 2018 г. до 73.83% в 2020 г. при вкладах по количеству процедур 3.52 и 6.53% соответственно. В 2011 г. вклад компьютерной томографии в обшее количество процедур составлял 30.07% по дозе и 2.01% по количеству процедур [2]. Таким образом, более чем двадцатипроцентный рост компьютерной томографии по коллективной дозе произошел за период с 2011 по 2018 гг. и практически такой же рост наблюдается всего за два года с 2018 по 2020 гг. Причины заключаются в существенном росте томографических исследований в период пандемии коронавируса.

Для сравнения, среднее облучение населения Франции оценивается в 4.5 мЗв на человека в год

КОСТЕРЕВ и др.

Исследуемый орган	Флюоро- графия	Рентгено- графия	Рентгено- скопия	Томо- графия	Прочие	Всего
Органы грудной клетки,	1665932	742347	6743	209847	4282	2564805
в т.ч. за счет профилактических процедур	1 127 598	133462				1242486
Конечности	576	665258	56	5135	605	666804
Шейные позвонки	1268	114303	4	2567	1500	115939
Грудные позвонки	46	61681		1887	445	63279
Поясничные позвонки	57	132207	115	5949	727	135316
Таз и бедро	71	73991	115	18039	1411	91008
Ребра и грудина	179	23259	10	1032	342	24777
Органов пищеварения		39537	3182	37450	7331	85728
Верхняя часть желудочно-кишечного тракта		45463	8698		2921	55818
Нижняя часть желудочно-кишечного тракта		37 813	6000		4308	47757
Череп	1976	222872	1954	52636	1786	278861
Челюстно-лицевая область, в т.ч. зубы		533405		9749	757	543416
Почки. Мочевыводящая система	2194	49061	587	6983	1407	57505
Молочная железа,		637643				629103
в т.ч. за счет профилактических процедур		362245				353705
Прочие		15041	483	4955	2958	23437
Всего	1672299	3323353	27947	348773	30780	5383553

Таблица 4. Рентгенологические процедуры по виду и группе органов в медицинских учреждениях за 2020 г.

Таблица 5. Средняя эффективная доза облучения и коллективная доза при рентгенологических исследованиях по виду и группе органов в 2020 г.

						Всего	
Исследуемый орган	Флюоро-	Рентгено-	Рентгено-	Томо-	Прочие	коллектив-	средняя
	трафия	трафия	скопия	трафия		ная доза,	доза,
						чел-зв/год	мзв
Органы грудной клетки,	0.05	0.07	1.91	5.31	6.32	1243.35	0.48
в т.ч. за счет профилактических процедур	0.04	0.08				59.95	0.05
Конечности	0.01	0.01	9.65	0.61	0.41	12.56	0.02
Шейные позвонки	0.10	0.09	3.30	3.10	5.95	26.59	0.23
Грудные позвонки	0.04	0.27		5.67	0.79	27.83	0.44
Поясничные позвонки	0.10	0.55	4.72	6.35	0.55	110.51	0.82
Таз и бедро	0.30	0.43		6.81	1.35	148.01	1.63
Ребра и грудина	0.10	0.34	3.30	0.10	0.80	8.25	0.33
Органов пищеварения		0.94	6.53	6.78	2.77	322.61	3.76
Верхняя часть желудочно-кишечного тракта		0.38	3.80		1.96	55.93	1.00
Нижняя часть желудочно-кишечного тракта		0.93	7.16		3.69	93.97	1.97
Череп	0.11	0.06	0.06	1.93	6.56	130.66	0.47
Челюстно-лицевая область, в т.ч. зубы		0.01		0.10	0.21	6.34	0.01
Почки. мочевыводящая система	0.60	0.40	2.20	5.57	1.66	63.29	1.10
Молочная железа,		0.07				44.01	0.07
в т.ч. за счет профилактических процедур		0.07				23.87	0.07
Прочие		0.62	0.77	21.56	0.50	117.98	5.03
Всего	0.05	0.12	4.03	5.15	3.14	2411.87	0.45

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

	Вклад в общее количество, %				
Вид процедуры	по количеству процедур	по коллективной дозе			
Флюорография	30.23	3.21			
Рентгенография	62.08	14.08			
Рентгеноскопия	0.49	3.69			
Компьютерная томография	6.53	73.83			
Радионуклидные исследования	0.40	2.68			
Прочие	0.27	2.50			

Таблица 6. Структура медицинского облучения пациентов в 2020 г.

Таблица 7. Структура медицинского облучения пациентов в 2018 г.

	Вклад в общее количество, %				
Вид процедуры	по количеству процедур	по коллективной дозе			
Флюорография	29.67	5.26			
Рентгенография	65.61	25.91			
Рентгеноскопия	0.58	9.02			
Компьютерная томография	3.52	54.38			
Радионуклидные исследования	0.36	3.55			
Прочие	0.25	1.88			

[5], но это облучение подвержено широкой индивидуальной изменчивости, особенно в зависимости от места жительства и количества радиологических обследований. Таким образом, средняя годовая индивидуальная эффективная доза может варьироваться в пять раз в зависимости от департамента. Составляющие этой дозы следующие: медицинское облучение 1.6 мЗв, радон 1.4 мЗв, внешнее облучение 0.6 мЗв, пища и вода 0.6 мЗв, космика 0.3 мЗв. При исключении медицинской составляющей средняя суммарная доза природного облучения населения Франции составляет 2.9 мЗв в год, что практически совпадает с аналогичной дозой 2.98 мЗв для РФ, приведенной в табл. 3. Составные компоненты этих доз также близки.

В [5] приводятся только обобщенные данные по рентгенологическим процедурам: 81 755 500 85 диагностических процедур, включающие по их классификации различные виды радиологии с вкладом по числу процедур 88.3%, компьютерная томография с вкладом 10.4% и ядерная медицина с вкладом 1.3%. Существенно большая чем в России суммарная эффективная коллективная доза 102.20 чел-Зв распределена между этими компонентами следующим образом: различные виды радиологии 21%, компьютерная томография 71.2% и ядерная медицина 7.8%. Анализ показывает на порядок большее количество рентгенологических процедур во Франции (примерно 1187 процедур на 1000 жителей в год) по сравнению с Россией, а также значительно больший вклад компьютерной томографии. Средняя эффективная доза на одного жителя в результате диагностических

радиологических исследований была оценена в 1.53 мЗв. Таким образом около 32.7% населения Франции прошла по крайней мере одну процедуру (исключая стоматологические процедуры), при этом половина пациентов получила дозу 0.1 мЗв или менее, 75% получили 1.5 мЗв или менее, в то время как наиболее подверженные воздействию облучения 5% пациентов получили дозу, превышающую 18.1 мЗв.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Проведенный анализ позволяет сделать вывод об удовлетворительной радиационной обстановке в 2020 г. на территориях, обслуживаемых ФМ-БА России. Отмечается как рост процедур компьютерной томографии, так и значительный рост вклада компьютерной томографии в коллективную дозу пациентов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. Kosterev V.V., Tsov'yanov A.G., Sivenkov A.G., Bragin Yu.N. // At. Energy. 2016. V. 119 (6). P. 419.
- 2. Костерев В.В., Цовьянов А.Г., Брагин Ю.Н., Сивенков А.Г. // Ядерная физика и инжиниринг. 2014. Т. 5 (5). С. 456.
- 3. Kosterev V.V., Tsov'yanov A.G., Sivenkov A.G., Bragin Yu.N. // At. Energy. 2016. V. 120 (1). P. 68.
- 4. Kosterev V.V., Tsov'yanov A.G., Sivenkov A.G., Bragin Yu.N. // At. Energy. 2021. V. 129 (6). P. 362.
- 5. ASN Report on the State of Nuclear Safety and Radiation Protection in France in 2020. 2020. Montrouge. France.

КОСТЕРЕВ и др.

Radiation Dose of the Population in 2020

V. V. Kosterev^{1, *}, A. G. Tsovyanov², A. G. Sivenkov², and V. E. Zhuravleva²

¹National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia ²Burnasyan Federal Medical Biophysical Centre, Federal Medical Biological Agency of Russia (FMBA), Moscow, 123098 Russia

*e-mail: vvkosterev@mephi.ru

Received January 21, 2022; revised July 31, 2022; accepted August 2, 2022

Abstract—The information on the radiation situation and radiation doses of the population received in 2020 in the territories serviced by the FMBA of Russia is presented. It was based on analysis, processing and generalization of data from radiation-hygienic passports of enterprises and territories serviced by the FMBA of Russia for 2020. The values of the average annual individual radiation dose of the population in 2020 due to the natural and technogenically altered radiation background are given. Information on the structure, number of radiological procedures by types and groups of organs, collective and average radiation dose of patients received in 2020 in the territories served by the FMBA of Russia is presented. Fluorograms and radiographs dominate the quantitative ratio. There is a significant decrease in the number of X-ray procedures in 2020 compared to 2018, primarily due to a decrease in the number of fluorography and radiography procedures. At the same time, compared to 2018, the collective dose has significantly increased, and the average dose for all procedures has increased, which is associated with a significant increase in computer tomography procedures. The structure of medical irradiation of patients in the institutions of the FMBA of Russia in 2020 is given. There is a significant increase in the contribution of computer tomography in terms of the collective dose compared to previous years (more than a twenty percent increase from 2018 to 2020), with an insignificant contribution in terms of the number of procedures. The reason is a significant increase in tomographic studies during the coronavirus pandemic. The analysis of radiation doses obtained during fluorography, radiography, fluoroscopy, tomography and other procedures was carried out. The comparison of dose characteristics in diagnostic X-ray radiological procedures in Russia and France was carried out.

Keywords: radiation situation, natural radiation background, radiation dose, exposure of the population, radiological procedures, medical exposure, collective dose

———— РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ ———

УДК 541.11

СРЕДСТВА МОНИТОРИНГА ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ ЖИДКИХ СРЕД АО "СНИИП" И ИХ РАЗВИТИЕ

© 2022 г. А. В. Редкоус^{*a*, *}, А. А. Иванов^{*a*}, А. В. Калин^{*a*}, М. Д. Дерябина^{*a*}, М. К. Савельев^{*a*}, В. Р. Минниханов^{*a*}

^аАО "Специализированный научно-исследовательский институт приборостроения", Москва, 123060 Россия

**E-mail: AVRedkous@sniip.ru* Поступила в редакцию 07.07.2022 г. После доработки 07.07.2022 г. Принята к публикации 18.07.2022 г.

Представлен сравнительный анализ средств контроля объемной активности жидких сред различных производителей и области их применения. Подробно рассмотрены устройства детектирования измерения объемной активности жидких сред разработки АО "СНИИП" различного назначения. На основании рассмотренных устройств детектирования описано решение о модернизации текущих устройств детектирования и результат разработки нового устройства. Озвучиваются актуальные требования к контролю объемной активности жидких сред, в том числе по реперному радионуклиду ²⁴Na, и предпринятые шаги к реализации устройства удовлетворяющего данным требованиям. В заключение уделяется внимание рассмотрению дальнейших перспектив развития аппаратуры контроля объемной активности жидких сред.

Ключевые слова: объемная активность, сцинтиллятор, устройство детектирования, новые разработки **DOI:** 10.56304/S2079562922030393

введение

Мониторинг объемной активности (OA) жидких сред на объектах использования атомных энергетических установок является показателем технического состояния и важным, а в некоторых случаях ключевым, критерием оценки влияния работы этих объектов на окружающую среду.

Оборудование радиационного контроля ОА жидких сред атомных электростанций (АЭС) применяются для решения широкого класса задач, начиная от контроля теплоносителя первого контура до мониторинга остаточной активности воды в сбросном канале. Многочисленные точки контроля ОА жидких сред позволяют должным образом поддерживать радиационную безопасность на территории атомной электростанции и за ее пределами [1].

Само оборудование можно разделить по методу контроля на проточное, погружное и бесконтактное. В статье представлены программно-аппаратные средства разработки АО "СНИИП", предназначенные для решения упомянутых выше задач.

ОБЗОР СУЩЕСТВУЮЩЕЙ АППАРАТУРЫ КОНТРОЛЯ ОА ЖИДКИХ СРЕД

Технические характеристики устройств детектирования (УД) контроля ОА жидких сред проточным методом различных производителей приведены в табл. 1. Информация об устройствах взята из открытых источников и актуальна на день публикации, однако, учитывая постоянно ужесточающиеся требования к объему радиационного контроля, следует иметь в виду, что производители постоянно совершенствуют свою продукцию, улучшая метрологические и эксплуатационные характеристики устройств.

Для контроля ОА жидких сред в продуктовой линейке АО "СНИИП" предусмотрено несколько технических решений: УЖГ-35Р в проточном исполнении, БДЖГ-13Р в погружном исполнении и БДРГ-42Р для бесконтактного контроля. Внешний вид УД приведен на рис. 1.

Из табл. 1 можно сделать вывод, что УДЖГ-35Р разработки АО "СНИИП", не имея принципиальных конструктивных доработок и модернизаций с двухтысячных годов, по-прежнему обладает достаточными метрологическими и эксплуатационными характеристиками, что обеспечивает его конкурентоспособность среди средств контроля ОА жидких сред. За свою долгую, для технического средства, историю УДЖГ-35Р зарекомендовало себя как надежное устройство, соответствуя всем проектным требованиям, которые предъявлялись ранее для подобных устройств. УДЖГ-35Р является средством измерения утвержденного типа СИ, имеет широкую референтность и приме-

УД	Тип детектора	Диапазон измерений ОА, Бк/м ³	Диапазон регистрируемых энергий, МэВ	Погрешность, не более, %
УДЖГ-35Р АО "СНИИП"	Пластиковый сцин- тиллятор	От 3.7 · 10 ³ До 3.7 · 10 ⁷	0.01-0.30	30
УДЖГ-20Е ФГУП "ПС3"	NaI(Tl)	От 2.0 · 10 ³ До 3.0 · 10 ⁷	0.30-1.50	35
УДЖГ-211 НПП "Радико"	NaI(Tl)	От 3.7 · 10 ⁴ До 3.7 ·10 ⁹	0.15-3.00	30
УДГП-01 НПП "Доза"	CsI(Tl)	От 4.0 · 10 ² До 4.0 · 10 ⁸	0.05-1.50	20

Таблица 1. Сравнение характеристик УД контроля ОА жидких сред

няется на Калининской АЭС, Ростовской АЭС, а также на ПЭБ (плавучем энергоблоке) "Академик Ломоносов". Учитывая длительный положительный опыт эксплуатации устройства, было принято решение о его применении в качестве основного технического средства для контроля ОА жидких сред в составе автоматизированной системы радиационного контроля (АСРК) АЭС "Руппур" в Республике Бангладеш.

Конструкция УДЖГ-35Р представляет собой сцинтиблок, погруженный в сосуд Маринелли, которые защищены от внешнего гамма-фона свинцовой защитой. Выбор органического сцинтиллятора и его геометрических размеров обусловлены следующими факторами: малым временем высвечивания для регистрации излучений при высокой загрузке высокорадиоактивных жидких сред, а также высокой чувствительностью за счет объема сцинтиллятора, что позволяет зарегистрировать низкие значение ОА жидких сред. Схемотехническим преимуществом УДЖГ-35Р является частотный выход, который подходит для модернизации ранее поставляемых систем АСРК, не предусматривающих УД с цифровым выходом.

Для решения специализированных задач контроля ОА жидких сред погружным методом применятся БДЖГ-13Р, конструктивным исполнением которого является сцинтиблок помещенный в штангу. Такое исполнение позволяет интегрировать УД в трубопроводы или размещать его в сбросных каналах. Чувствительным элементом БДЖГ-13Р является пластиковый сцинтиллятор, аналогичный применяемому в УДЖГ-35Р. Диапазон измерений БДЖГ-13Р от 1.0 · 10³ до 1.0 · 10⁸ Бк/м³.

Бесконтактный способ контроля ОА в технологических трубопроводах АЭС в линейке устройств осуществляется БДРГ-42Р в свинцовой защите. БДРГ-42Р работает на полупроводниковом детекторе и имеет диапазон измерений от $1.0 \cdot 10^8$ до $2.0 \cdot 10^{14}$ Бк/м³.

МОДЕРНИЗАЦИЯ СРЕДСТВ КОНТРОЛЯ ОА ЖИДКИХ СРЕД АО "СНИИП"

Ввиду ограничений по применению УДЖГ-35Р и с целью совершенствования продуктовой линейки АСРК последовало решение о разработке новых устройств контроля ОА жидких сред в рамках инвестиционного проекта, реализуемого в АО "СНИИП". Результатом разработки стало устройство детектирования УДЖГ-43Р.

К знаниям и опыту предыдущих поколений были добавлены современные подходы решения задач, что позволило предотвратить критические ошибки на этапе макетирования. Были проведе-



УДЖГ-35Р







Рис. 1. Внешний вид УД контроля ОА жидких сред "СНИИП".

СРЕДСТВА МОНИТОРИНГА ОБЪЕМНОЙ АКТИВНОСТИ

Особенность	Назначение
Встроенный микроконтроллер	Проведение операций по регулировке, настройке и диагностики устройства без разборки Пересчет полученных данных в итоговое значение ОА с учетом мертвого вре- мени детектора
Цифровой выход с интерфейсом RS-485	Обеспечение надежной и устойчивой связи УД с техническими средствами верхнего уровня
Унифицированные электрон- ные узлы	Электронные узлы из состава УДЖГ-43Р разработаны таким образом, что имеют возможность работать с другими сцинтилляционными детекторами
Конструкция блока детектиро- вания	Блок детектирования унифицирован для применения в проточном и погруж- ном исполнении
Устройство обработки данных	Устройство обработки данных находится сразу в составе УД и предназначено для управления УД и отображения информации в реальном времени. Устройство обработки информации может находиться удаленно, до 500 м от УД.

Таблица 2. Отличительные особенности УДЖГ-43Р и их назначение

ны работы по части моделирования поведения жидкости в сосуде Маринелли, которые способствовали оценке предпочтительного размещения патрубков в сосуде. Осуществлялось компьютерное SPICE-моделирование аналоговых схемотехнических решений, которое позволило рассмотреть и оптимизировать предварительные расчеты параметров схем, не прибегая к макетированию. Написание встраиваемого программного обеспечения проводилось в современных средах разработки, что сократило отладку алгоритмов работы и настройку периферии устройства.

При разработке УДЖГ-43Р были учтены как преимущества УДЖГ-35Р, к которым можно отнести применение пластикового сцинтиллятора, в виду многолетнего опыта успешного применения, а также устранены недостатки: например, сборная защита сменила монолитную, что увеличило практичность сборки, разборки и транспортировки устройства. Отличительные особенности и назначение УДЖГ-43Р приведены в табл. 2.

МЕТРОЛОГИЧЕСКОЕ ОБЕСПЕЧЕНИЕ

УДЖГ-43Р предназначается для поставки на строящиеся Курскую АЭС-2 и АЭС "Аккую". Для устройства детектирования УДЖГ-43Р разработан полный комплект конструкторской документации и запущен процесс изготовления опытного образца. В текущем 2022 г. планируется проведение приемочных испытаний и испытаний в целях утверждения типа средств измерений с последующим внесением УДЖГ-43Р в Федеральный информационный фонд по обеспечению единства средств измерений. Все испытания, в том числе испытания в целях утверждения типа, будут проведены на базе аккредитованных лабораторий центра метрологии и испытаний АО "СНИИП" (ЦМИ). Возможности ЦМИ позволяют подтвердить основные метрологические характеристики средств контроля ОА жидких сред с применением образцовых радиоактивных растворов и твердых образцовых источников. Область аккредитации ЦМИ для радиометров жидкости от $1.0 \cdot 10^3$ до $1.0 \cdot 10^{13}$ Бк/м³.

ПЛАНИРУЕМЫЕ РАЗРАБОТКИ

В начальной стадии разработки находится устройство контроля ОА жидких сред с функцией измерения реперного радионуклида ²⁴Na. Необходимость создания подобного устройства продиктована установлением в проектах новых АЭС требований к измерению ОА нуклида ²⁴Na в системе продувки парогенератора, свидетельствующего о потере герметичности тепловыделяющих элементов. На данный момент для спектрометрического УД выполнены работы по выбору детектора, произведены расчеты и моделирование оптимальной геометрии измерительной емкости с учетом необходимости измерения требуемого диапазона ОА и импульсной загрузки детектора, также произведен расчет геометрии и массы защиты от внешнего гамма-фона.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

АО "СНИИП" имеет значительный опыт в разработке устройств детектирования ОА жидких сред, но в условиях необходимости повышения безопасности и технологичности АЭС, строящихся по российским проектам, ключевым является совершенствование УД с применением современных подходов: математического моделирования на различных стадиях разработки, использования современных сцинтилляторов и элементной базы, организации цифровых интерфейсов связи и управления УД. Дальнейшее увеличение точности контроля ОА жидких сред подразумевает взаимодействие и совместные работы с проектными институтами и эксплуатирующими организациями, проведение научных исследований с использованием современных инструментов и сопоставление их результатов с экспериментальными данными, создание новых методик выполнения измерений и их аттестацию.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

Means of Monitoring The Volumetric Activity of Liquid Media of JSC "SNIP" and Their Development

A. V. Redkous^{1, *}, A. A. Ivanov¹, A. V. Kalin¹, M. D. Deryabina¹, M. K. Savelev¹, and V. R. Minnihanov¹

¹JSC "Specialized Scientific Research Institute of Instrument Engineering", Moscow, 123060 Russia *e-mail: AVRedkous@sniip.ru Received July 7, 2022; revised July 7, 2022; accepted July 18, 2022

Abstract—A comparative analysis of the means of controlling the volumetric activity of liquid media from various manufacturers and their application areas is presented. Devices for detecting and measuring the volumetric activity of liquid media developed by JSC "SNIIP" for various purposes are considered in detail. Based on the considered detection devices, the decision to modernize the current detection devices and the result of the development of a new device are described. The current requirements for monitoring the volumetric activity of liquid media, including the reference radionuclide ²⁴Na, and the steps taken to implement a device that meets these requirements are announced. In conclusion, attention is paid to the consideration of further prospects for the development of equipment for monitoring the volumetric activity of liquid media.

Keywords: volumetric activity, scintillator, detection device, new developments

^{1.} Фертман Д.Э., Чебышов С.Б. Радиометрия сред. 2017. Москва: ФИД Деловой экспресс.

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ, 2022, том 13, № 6, с. 605–610

——— МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА ———

УДК 53.047

IN VIVO ИССЛЕДОВАНИЕ ЛАЗЕРНО-АБЛИРОВАННЫХ ЗОЛОТЫХ НАНОЧАСТИЦ КАК ДОЗОПОВЫШАЮЩИХ АГЕНТОВ ДЛЯ БИНАРНОЙ ЛУЧЕВОЙ ТЕРАПИИ ЗЛОКАЧЕСТВЕННЫХ НОВООБРАЗОВАНИЙ

© 2022 г. В. А. Скрибицкий^{*a*, *b*, *, Ю. А. Финогенова^{*a*, *b*}, А. А. Липенгольц^{*a*, *b*, *c*}, Н. В. Позднякова^{*a*, *b*}, А. В. Смирнова^{*a*, *b*, *d*}, К. Е. Шпакова^{*a*, *b*}, Е. Ю Григорьева^{*a*, *b*}}

^аНациональный медицинский исследовательский центр онкологии имени Н.Н. Блохина Минздрава России, Москва, 115478 Россия

^bНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия ^cГНЦ РФ Федеральный медицинский биофизический центр имени А.И. Бурназяна,

ПРФ Феверальный мевицинский виофизический центр имени А.И. Бурназы Москва, 123098 Россия

^d Московский клинический научный центр имени А.С. Логинова ДЗМ, Москва, 111123 Россия

*E-mail: skvseva@yandex.ru

Поступила в редакцию 30.05.2022 г. После доработки 30.05.2022 г. Принята к публикации 06.06.2022 г.

Золотые наночастицы (ЗНЧ) активно используют в качестве дозоповышающего агента для совместного применения с рентгеновским облучением. Синтез золотых наночастиц методом лазерной абляции имеет ряд преимуществ перед остальными методами, например, возможность создания химически чистого раствора и относительно малая стоимость производства при масштабировании синтеза. В данной работе проведено исследование дополнительного противоопухолевого эффекта от совместного применения золотых наночастиц, синтезированных методом лазерной абляции, при комбинированном действии с рентгеновским излучением. В исследовании использованы мыши с перевитой подкожно сингенной аденокарциномой Ca755. Облучение проводилось в дозе 10 Гр через 30 мин после введения ЗНЧ. В результате в опытной группе животных установлено 66% полных регрессий в течение 210 сут с момента перевивки, в то время как в контрольной облученной группе регрессии опухолевых узлов отсутствовали. Проведена оценка поглощенной дозы на стенки сосудов опухоли в присутствии золотых наночастиц в кровотоке: вследствие локального энерговыделения доза достигала 26.8 Гр.

Ключевые слова: золотые наночастицы, дозоповышающий агент, локальное увеличение дозы, опухолевая модель, торможение роста опухоли, рентгеновское излучение **DOI:** 10.56304/S2079562922030502

введение

Наночастицы золота обладают всеми необходимыми свойствами для использования их в качестве платформы новых контрастных средств для КТ и/или дозоповышающих агентов для лучевой терапии [1-4]. Золото - биосовместимый материал, не вступающий в реакции с компонентами клеточных структур живого организма [5]. Модификация покрытия поверхности золотых наночастиц может обеспечить специфичное накопление в различных органах и тканях, например, придавая частицам тропность к онкомаркерам на поверхности опухолевых клеток [6]. Также золотые наночастицы способны проходить через поврежденный гематоэнцефалический барьер и не специфично накапливаться в паталогических очагах головного мозга [7]. Наночастицы золота,

введенные перед терапевтическим облучением опухолей, обладают свойством увеличивать локальное энерговыделение и способствуют торможению роста опухоли [8].

Существует много методов синтеза коллоидных растворов золотых наночастиц, однако наиболее распространенные среди них — это химический метод Туркевича и его различные модификации и физический метод лазерной абляции. Последний метод предоставляет возможность синтезировать химически чистые золотые наночастицы в деионизированной воде, и является более экономически выгодным при масштабировании до промышленного производства [9]. Однако для биомедицинских исследований чаще используют вариации метода Туркевича по причине его хорошей изученности и относительной простоте синтеза в лабораторных условиях, не требующего дорогостоящего оборудования. Таким образом, вопрос применения лазерно-аблированных золотых наночастиц в биологических системах еще мало изучен.

Целью данной работы являлось исследование лазерно-аблированных золотых наночастиц в качестве дозоповышающего агента при облучении сингенных мышиных опухолей in vivo и оценка локального дозового увеличения в опухолевом узле.

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Синтез и характеризация ЗНЧ

Золотые наночастицы были синтезированы одностадийным методом фемтосекундной лазерной абляции в 1 мМ растворе NaCl. При наработке золотых наночастиц использовался Yb:KGW лазер (длина волны 1030 нм, длительность импульса 250 фс, энергия импульса 30 мкДж, частота следования лазерных импульсов 100 кГц) [10]. Золотые наночастицы покрывали по оригинальной методике полимером mPEG-SH 2 кДа. Оценку среднего размера и концентрации проводили спектрофотометрическим методом [11]. Измерение спектров поглощения коллоидного раствора золотых наночастиц проводили в кварцевой кювете с длиной оптического пути 10 мм при 20°С с использованием спектрофотометра Cary 50 (Varian, Австралия). Для оценки гидродинамического диаметра золотых наночастиц использовали спектрометр динамического рассеяния света — лазерный корреляционный спектрометр Zetasizer Nano ZS (Malvern Instruments, Великобритания).

Для определения распределения размера золотых наночастиц в коллоидном растворе использовали сканирующий просвечивающий электронный микроскоп MAIA 3 (TESCAN, Чехия).

Опухолевая модель

В исследовании использованы самки мышей линии C57Bl/6 (ИЦИГ, Россия) с перевитой подкожно аденокарциномой молочной железы Ca755. Инокулят готовили ех tempore: 7% суспензия опухолевых клеток в растворе Хэнкса. Инокулят вводили подкожно в правую заднюю лапу животного в объеме 0.05 мл. Для проведения облучения животные были разделены на 3 группы: контроль (n = 6) (животные без терапии), облученный контроль (n = 6) (облученные животные) и опытная группа (n = 6) (облученные животные с введением ЗНЧ). Все эксперименты с использованием лабораторных животных был осуществлены в соответствии с официальными национальными этическими нормами.

Облучение и визуализация

Облучение проводили при достижении размера опухоли объема ~150–200 мм³. За 30 мин до облучения опытной группе животных внутривенно вводили коллоидный раствор ЗНЧ в дозе 975 ± 113 (мг Au)/кг. Для облучения использовали установку РУСТ-М1 при напряжении 200 кВ и токе 5 мА. Индивидуальную дозиметрию проводили с использованием дозиметрических пленок Gafchromic EBT3©. Средняя поглощенная доза в объеме опухоли составила 10.7 ± 0.2 Гр. Через 1 ч после облучения проводили визуализацию опухолевого узла методом микроКТ на доклиническом трехмодальном томографе ПЭТ/ОФЭКТ/КТ VEC-Tor6 CT (MiLabs, Нидерланды).

РЕЗУЛЬТАТЫ

Характеристика ЗНЧ

Синтезирован и подготовлен к внутривенному введению животным коллоидный раствор золотых наночастиц. Средний диаметр золотого ядра составил 8.2 ± 1.4 нм, концентрация золота в коллоидном растворе 160 ± 8 (мг Au)/мл. Мода гидродинамического диаметра составила 17 нм. На рис. 1 представлено изображение электронной микроскопии ЗНЧ и их распределение по размеру. По полученному распределению можно сделать вывод, что средний диаметр золотого ядра наночастиц составляет 8 ± 4 нм.

Дополнительный противоопухолевый эффект ЗНЧ

В результате исследования дополнительного противоопухолевого эффекта от комбинированного применения ЗНЧ и рентгеновского излучения были построены кривые выживаемости, представленные на рис. 2.

В опытной группе у 66% животных наблюдалась полная регрессия опухолевого узла. Животных с полной регрессией опухоли наблюдали в течение 210 сут без признаков рецидива опухоли. В других группах (контрольной и облученной без ЗНЧ) полных регрессий не наблюдалось.

Механизм гибели опухолевых клеток при комбинированном применении ЗНЧ и рентгеновского излучения может включать повреждение ДНК, оксидативный стресс, нарушение клеточного цикла и индукцию апоптоза [12, 13]. Однако в данном случае наиболее вероятной причиной регрессии опухолевого узла является повреждение опухолевых сосудов. Как видно на компьютерных томограммах (рис. 3), полученных через 1 ч после рентгеновского облучения, золото присутствует в кровеносных сосудах. Концентрация золота в крови мыши через 1 ч после облучения экспериментально была оценена как 12 ± 2 (мг Au)/мл [14]. Согласно работе [15], данная концентрация

606



Рис. 1. Электронная микроскопия ЗНЧ, используемых в данном исследовании и их распределение по размеру.



Рис. 2. Кривые выживаемости (сплошная линия – контрольная группа, пунктирная линия – контрольная облученная группа, точечная линия – опытная группа).

золота соответствует коэффициенту локального увеличения дозы равному 2.5. Присутствие дозоповышающего агента в кровотоке при облучении опухоли способствует увеличению поглощенной дозы на стенки сосудов и их повреждению [16]. Таким образом оцененная поглощенная доза на стенки сосудов опухоли составила 26.8 Гр.

На 15 сут после облучения всем животным из опытной группы была выполнена микроКТ. Отмечалось сохранение золота в фасциях пораженной лапы, в том числе у мышей с полной регрессией опухоли, а также накопление золота в печени и селезенке у всех мышей. Впоследствии мышам с полной регрессией микроКТ проводилась раз в месяц. Сохранение золота в фасциях пораженной лапы отмечалось вплоть до последней временной точки наблюдения 210 сут (рис. 4). Ни в одну временную точку не было зафиксировано снижения рентгеноплотности печени и селезенки, что указывает на отсутствие экскреции золотых наночастиц.



Рис. 3. Аксиальный срез КТ изображения тазобедренной области мыши из опытной группы через 1 ч после введения золотых наночастиц. Красными стрелками указаны крупные сосуды правой задней лапы мыши с опухолевым узлом.



Рис. 4. Корональный срез КТ изображения задних лап мыши из опытной группы на 210 сут после перевивки. Слева изображена левая здоровая лапа, справа – правая лапа мыши, куда была перевита опухоль и впоследствии наступила полная регрессия, красные стрелки указывают на золотой след в фасциях мышц.

Сразу после введения коллоидного раствора наночастиц золота через хвостовую вену животного, наблюдали изменение цвета кожи на нешерстистых участках тела: уши, нос, лапы и хвост мышей приобретали цианотичный (синий) цвет (рис. 5). В течение всего периода наблюдения возвращения цвета кожи к нормальному не наблюдалось. Подобный эффект наблюдался ранее другими исследователями у пациентов [17, 18].

Несмотря на изменение цвета кожи и длительное сохранение золота в печени и селезенке, не было зафиксировано снижения массы тела, нарушения потребления воды и корма, изменений в поведении у животных из опытной группы в течение всего периода наблюдения после установления факта регрессии, что косвенно указывает на отсутствие долгосрочных токсических эффектов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В рамках данной работы показана возможность использования лазерно-аблированных золотых наночастиц в качестве готового тераностического препарата. Показана возможность контрастировать мелкие сосуды опухолевого узла на перевивной мышиной аденокарциноме молочной железы Ca755. Также проведен модельный эксперимент in vivo с локальным увеличением дозы в сосудах опухоли при наличии в них ЗНЧ.

В результате исследования дополнительного терапевтического эффекта при совместном использовании ЗНЧ и рентгеновского излучения в



Рис. 5. Изменение цвета кожи мышей после введения золотых наночастиц. Справа показана здоровая мышь до введения золотых наночастиц. Слева мышь из опытной группы на 210 сут после перевивки, которой вводили золотые частицы. Красными стрелками указаны нешерстистные участки, изменившие цвет кожи.

опытной группе было установлено наличие 66% полных регрессий в течение 210 дней с момента перевивки. Вероятно, данный процент регрессий объясняется наличием большого количества золота в сосудах опухоли на момент облучения и их повреждением. По аналитической оценке, поглощенная доза на стенки сосудов в данной работе составила 26.8 Гр.

В течение всего срока наблюдения за животными, достигшими полной регрессии, не было зафиксировано негативных эффектов в результате введения ЗНЧ с последующим облучением. Получен результат, косвенно указывающий на отсутствие путей экскреции ЗНЧ из печени, селезенки и фасций мышц. Изменение цвета кожи в результате введения ЗНЧ не оказывает значимых негативных эффектов на состояние животных, содержащихся в лабораторных условиях.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. *Gao Q., Zhang J., Gao J., et al.* // Front. Bioeng. Biotechnol. 2021. V. 9. P. 1.
- Medici S., Peana M., Coradduzza D., et al. // Seminars in Cancer Biology. 2021. New York: Academic. V. 76. P. 27.
- Kulakov V.N., Lipengolts A.A., Grigorieva E.Yu., et al. // Zh Oncol.: Diag. Radiol. Radiother. 2018. V. 1 (4). P. 82 (in Russian).
- 4. Kulakov V.N., Lipengol'ts A.A., Grigor'eva E.Y., et al. // Pharmaceut. Chem. J. 2016. V. 50 (6). P. 388.

- Sani A., Cao C., Cui D. // Biochem. Biophys. Rep. 2021. V. 26. P. 100991.
- Goddard Z.R., Marín M.J., Russell D.A., et al. // Chem. Soc. Rev. 2020. V. 49 (23). P. 8774.
- 7. Hainfeld J.F., Smilowitz H.M., O'Connor M.J., et al. // Nanomedicine. 2013. V. 8 (10). P. 1601.
- 8. *Chen Y., Yang J., Fu S., et al.* // Int. J. Nanomed. 2020. V. 15. P. 9407.
- Jendrzej S., Gökce B., Epple M., et al. // Chem. Phys. Chem. 2017. V. 18 (9). P. 1012.
- Popov A.A., Zelepukin I.V., Tikhonowski G.V., et al. // J. Phys.: Conf. Ser. 2021. V. 2058 (1). P. 012004.
- Skribitsky V.A., Pozdniakova N.V., Lipengolts A.A., et al. // Biophysics. 2022. V. 67 (1). P. 22.
- 12. *Rosa S., Connolly C., Schettino G., et al.* // Cancer Nanotechnol. 2017. V. 8 (1). P. 1.
- Cui L., Her S., Borst G.R., et al. // Radiother. Oncol. 2017. V. 124 (3). P. 344.
- Hainfeld J.F., O'Connor M.J., Dilmanian F.A., et al. // Brit. J. Radiol. 2011. V. 84 (1002). P. 526.
- 15. *Roeske J.C., Nunez L., Hoggarth M., et al.* // Technol. Cancer Res. Treatm. 2007. V. 6 (5). P. 395.
- Lipengolts A.A., Vorobyeva E.S., Finogenova Yu.A., et al. // Med. Phys. 2019. V. 84 (4). P. 16 (in Russian).
- Schamberg J.A. Y.F. // Arch. Dermatol. Syphilol. 1928.
 V. 18 (6). P. 862.
- Fleming C.J., Salisbury E.L., Kirwan P., et al. // J. Am. Acad. Dermatol. 1996. V. 34 (2). P. 349.

ЯДЕРНАЯ ФИЗИКА И ИНЖИНИРИНГ том 13 № 6 2022

In Vivo Studies of Laser-Ablated Gold Nanoparticles as Dose Enhancers for Binary Radiotherapy of Cancer

V. A. Skribitsky^{1, 2, *}, Yu. A. Finogenova^{1, 2}, A. A. Lipengolts^{1, 2, 3},

N. V. Pozdniakova^{1, 2}, A. V. Smirnova^{1, 2, 4}, K. E. Shpakova^{1, 2}, and E. Yu. Grigorieva^{1, 2}

¹Blokhin National Medical Research Centre of Oncology,

Ministry of Health of the Russian Federation, Moscow, 115478 Russia

²National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

³Burnasyan Federal Medical Biophysical Centre, Federal Medical Biological Agency of Russia (FMBA), Moscow, 123098 Russia

⁴Loginov Moscow Clinical Research Practical Centre of the Moscow Healthcare Department, Moscow, 111123 Russia

*e-mail: skvseva@yandex.ru

Received May 30, 2022; revised May 30, 2022; accepted June 6, 2022

Abstract—Gold nanoparticles (GNPs) are actively used as a dose enhancement agent in combination with X-ray irradiation. The synthesis of gold nanoparticles by laser ablation has a number of advantages over other methods. For example, the possibility of creating a chemically pure solution and a relatively low production cost when synthesis is scaled up. In this work, we studied an antitumor effect from the combined use of gold nanoparticles (synthesized by laser ablation) and X-rays. Mice with syngeneic adenocarcinoma Ca755, transplanted subcutaneously, were used for the study. The tumor was irradiated at a dose of 10 Gy in 30 min post injection of GNPs. As a result, 66% of complete regressions were found in the experimental group of animals within 210 days from the moment of inoculation. There were no regressions of tumor in the control irradiated group. The absorbed dose to the walls of tumor vessels in the presence of gold nanoparticles in the blood-stream was evaluated as 26.8 Gy.

Keywords: gold nanoparticles, dose enhancement agent, local dose enhancement, tumor model, tumor growth suppression, X-rays

——— МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА ———

УДК 53.047

ПСМА-СПЕЦИФИЧНЫЕ РАДИОФАРМПРЕПАРАТЫ ДЛЯ ВИЗУАЛИЗАЦИИ И ТЕРАПИИ РАКА ПРЕДСТАТЕЛЬНОЙ ЖЕЛЕЗЫ

© 2022 г. В. К. Тищенко^{*a*, *}, В. М. Петриев^{*a*, *b*}, О. П. Власова^{*c*}, В. В. Крылов^{*a*}, П. В. Шегай^{*c*}, С. А. Иванов^{*a*, *d*}, А. Д. Каприн^{*c*, *d*}

^а Медицинский радиологический научный центр имени А.Ф. Цыба, Национальный медицинский исследовательский центр радиологии Минздрава РФ, Обнинск, Калужская область, 249031 Россия

^bНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия

 c Национальный медицинский исследовательский центр радиологии Минздрава Р ${m \Phi},$

Обнинск, Калужская область, 249036 Россия

^d Российский университет дружбы народов, Москва, 117198 Россия *E-mail: vikshir82@mail.ru Поступила в редакцию 31.05.2022 г. После доработки 31.05.2022 г. Принята к публикации 06.06.2022 г.

Молекулярные изменения при раке предстательной железы приводят к повышенной экспрессии простат-специфического мембранного антигена (ПСМА), который является подходящей мишенью для визуализации и терапии с использованием радиофармацевтических лекарственных препаратов (РФЛП). В представленном обзоре обобщены данные о наиболее эффективных клинически значимых ПСМА-специфичных РФЛП для диагностики и терапии рака предстательной железы. Обсуждены преимущества и недостатки лигандов на основе моноклональных антител и их фрагментов, а также низкомолекулярных ингибиторов ПСМА.

Ключевые слова: простат-специфический мембранный антиген (ПСМА), рак предстательной железы, моноклональные антитела, низкомолекулярные ингибиторы ПСМА **DOI:** 10.56304/S2070562022030526

DOI: 10.56304/S2079562922030526

введение

Рак предстательной железы (РПЖ) является вторым по распространенности злокачественным новообразованием и пятой по значимости причиной смерти от рака среди мужчин [1]. По прогнозам Глобальной онкологической обсерватории (GCO) в течение ближайших 20 лет число мужчин с РПЖ увеличится на 64% и составит 2.3 млн. в год [1].

При обнаружении РПЖ на ранней стадии, пациенты, как правило, имеют благоприятный прогноз. Однако течение РПЖ может варьировать от вялотекущего до высокоагрессивного, обладающего резистентностью к гормональному лечению и сопровождающегося развитием метастазов (метастатический кастрационно-резистентный рак предстательной железы (мКРРПЖ)), что существенно снижает вероятность благоприятного исхода заболевания [2]. Таким образом, идентификация потенциальных молекулярных мишеней при распространенном РПЖ имеет решающее значение для диагностики и последующего лечения РПЖ, учитывая широкий спектр терапевтических возможностей, которые могут различаться в зависимости от стадии заболевания.

На сегодняшний день ключевой мишенью для идентификации РПЖ является простат-специфический мембранный антиген (ПСМА). ПСМА представляет собой трансмембранный гликопротеин, сверхэкспрессируемый злокачественными клетками предстательной железы. Более того, повышенная экспрессия ПСМА отмечена в эндотелиальных клетках многих солидных опухолей различных локализаций: молочной железы, легких, головного мозга, щитовидной железы и др. [3]. В норме экспрессия ПСМА ограничивается проксимальными отделами почечных канальцев. слюнными и слезными железами, тонким кишечником и глиальными клетками [4]. Тем не менее, учитывая значительно более высокую (в 100-1000 раз) экспрессию ПСМА почти всеми гистологическими типами РПЖ по сравнению с нормальной тканью предстательной железы и другими органами, ПСМА представляет собой идеальную мишень для визуализации и терапии РПЖ с помощью радиофармацевтических лекарственных препаратов (РФЛП). Такая адресная доставка может осуществляться с помощью синтетических низкомолекулярных ингибиторов, моноклональных антител и их фрагментов, нацеленных на ПСМА.

Целью данного обзора является обобщение имеющихся на сегодняшний день данных о наиболее перспективных ПСМА-специфичных РФЛП, предназначенных для визуализации и терапии РПЖ.

Моноклональные антитела и их фрагменты для диагностики и терапии РПЖ

Моноклональные антитела (мАТ), или иммуноглобулины типа G, нацеленные на ПСМА, широко используются для визуализации или терапии РПЖ. Возможность их использования для адресной доставки радионуклидов непосредственно к клеткам опухоли обусловлена высокоспецифичным бивалентным взаимодействием мАТ с ПСМА.

Первым РФЛП на основе полноразмерных мАТ к ПСМА стал ¹¹¹In-капромаб пендетид (¹¹¹In-7E11), представляющий собой мышиные антитела, конъюгированные с хелатором DTPA и меченные ¹¹¹In. Его фармацевтическая форма под коммерческим названием ProstaScint[®] в 1996 году была одобрена Управлением по санитарному надзору за качеством пищевых продуктов и медикаментов (FDA) для иммуносцинтиграфии морфологически подтвержденного РПЖ с высоким риском развития метастазов в лимфатических узлах, а также выявления рецидива РПЖ после радикальной простатэктомии у пациентов с повышенным уровнем ПСА [5].

Существенным недостатком ProstaScint[®] является то, что он связывается с внутриклеточным эпитопом ПСМА, доступным только в некротических или апоптотических клетках с поврежденной клеточной мембраной, из-за чего ОФЭКТ или гамма-сцинтиграфия РПЖ имеют низкую чувствительность и специфичность. Так, в проспективном клиническом исследовании чувствительность и специфичность обнаружения лимфатических узлов с ProstaScint[®] у пациентов с РПЖ составила 62 и 72% соответственно [5]. Другим недостатком данного РФЛП является его иммуногенность, т.е. образование в ответ на его введение нейтрализующих антител, что может привести к серьезным системным реакциям организма человека [2].

Дальнейшие разработки были направлены на синтез мАТ к внеклеточному домену ПСМА. Полученные антитела (J591, J533, J415, 3/A12, 3/E7, 3/F11, D2B, 5D3 и др.) обладали более высоким сродством к ПСМА и улучшенной фармакокинетикой по сравнению с ProstaScint[®] [2].

Развитие генной инженерии способствовало разработке и получению гуманизированных мАТ, в которых от антител мыши остаются только участки вариабельных доменов, непосредственно взаимодействующие с антигеном, а все остальные части молекулы замещаются на последовательность иммуноглобулинов человека. РФЛП на основе гуманизированных мАТ показали хорошую переносимость и высокую эффективность в обнаружении первичной опухоли и ее метастазов, а также для терапии РПЖ. Так, в ходе клинических исследований использование ¹¹¹In-DOTA-huJ591 позволило обнаружить на 13.7% больше метастатических участков в костной ткани по сравнению с методами КТ и остеосцинтиграфии [6].

Для ПЭТ-визуализации РПЖ был предложен конъюгат ⁸⁹Zr-DFO-huJ591. В пилотном клиническом исследовании у пациентов с метастатическим РПЖ чувствительность обнаружения первичной опухоли достигала 100% [7]. В последующем проспективном исследовании I/II фазы с участием 50 пациентов с метастатическим кастрат-резистентным РПЖ точность обнаружения костных метастазов с ⁸⁹Zr-DFO-huJ591 составила 95.2%, что выше по сравнению с другими методами диагностики (ПЭТ с ¹⁸F-ФДГ, ОФЭКТ с ^{99m}Tс-МДФ и КТ) [8]. При обнаружении метастазов в мягких тканях точность ПЭТ с ⁸⁹Zr-DFO-huJ591 не превышала 60% [8].

Использование мАТ, меченных терапевтическими радионуклидами, может быть весьма эффективным для селективной терапии РПЖ. Первые РФЛП для иммунотерапии рака содержали β -излучающие радионуклиды ⁹⁰Ү и ¹⁷⁷Lu. ⁹⁰Ү является высокоэнергетическим чистым β -излучателем ($T_{1/2} = 2.67$ сут, $E_{\beta max} = 2.3$ МэВ, величина пробега 12 мм), тогда как ¹⁷⁷Lu является смешанным β -/ γ -излучателем ($T_{1/2} = 6.67$ сут, $E_{\beta max} = 497$ кэВ, $E_{\gamma} = 208$ кэВ, величина пробега 1.7 мм).

В ходе проведенных клинических исследований I фазы было отмечено специфическое связывание ⁹⁰Y-DOTA-huJ591 и ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 с ПСМА, а также сообщалось о дозозависимой противоопухолевой активности обоих препаратов и снижении уровня простатспецифического антигена (ПСА) в крови [9, 10].

Впоследствии было проведено исследование II фазы с участием 47 пациентов с прогрессирующим мКРРПЖ, оценивающее эффективность ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 после однократной инфузии в дозах 2.41 ГБк/м² и 2.59 ГБк/м² [10]. У большей части пациентов (59.6%) наблюдалось снижение уровня ПСА. В группе, получавшей ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 в дозе 2.59 ГБк/м², отмечено увеличение выживаемости до 21.8 месяцев против 11.9 месяцев. У всех испытуемых обнаруживалась обратимая гематологическая токсичность. Тромбоцитопения 4 степени наблюдалась у 46.8% пациентов [10].

После вышеупомянутых исследований I и II фаз были предприняты попытки оптимизировать терапевтический ответ и снизить токсичность терапии с ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 путем фракционирования дозы. Фракционное введение ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 позволило увеличить кумулятивную дозу до 3.33 ГБк/м² (2 дозы по 1.67 ГБк/м² через 2 недели). У 35.3% пациентов была отмечена обратимая нейтропения 4 степени, а у 58.8% пациентов тромбоцитопения [11]. Однако дальнейшее гиперфракционирование дозы ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 (введение 0.925 ГБк/м² каждые 2 недели до появления токсичности выше 2 степени, суммарная активность — 2.78—5.55 ГБк/м²) у пациентов с мКРРПЖ не выявило дополнительных преимуществ по сравнению с однократной дозой ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 или фракционированной терапией с двумя дозами ¹⁷⁷Lu-DOTA-huJ591 [12].

Особый интерес представляет альфа-терапия РПЖ с использованием мАТ к ПСМА. Альфа-излучатели обладают более высокой линейной передачей энергии (5.8–8.4 МэВ) по сравнению с β -частицами, вызывая нерепарируемые двухцепочечные разрывы ДНК. Радиус проникновения α -частиц в ткани составляет всего 50–100 мкм, что приводит к избирательному уничтожению опухолевых клеток при сохранении окружающих тканей. Вдобавок, повреждающее действие α -излучателей не зависит от степени оксигенации опухоли [13]. Все это делает альфа-терапию высокоэффективным методом терапии опухолей, резистентным к другим способам лечения.

В І фазе клинического исследования ²²⁵Ac-J591 вводился пациентам с прогрессирующим мКРРПЖ однократно [14]. Диапазон доз составлял от 13.3 до 93.3 кБк/кг. Предварительные результаты показали, что ²²⁵Ac-J591 хорошо переносится даже при введении самой высокой дозы 93.3 КБк/кг. Из 22 пациентов у 41% наблюдалось снижение уровня ПСА более чем на 50%. Общая токсичность была низкой: лишь у 1 пациента были отмечены анемия и тромбоцитопения 4 степени [14].

Тем не менее, существует ряд недостатков РФЛП на основе мАТ. Так, относительно высокая молекулярная масса (~150 кДа) мАТ препятствует их гомогенному распределению в опухоли, из-за чего они накапливаются преимущественно по периферии, что приводит к неоптимальной терапевтической эффективности РФЛП. Другим недостатком является медленное выведение мАТ из крови и накопление в печени, что увеличивает дозовую нагрузку на организм пациента и способствует развитию гепатотоксичности. Меньшие по размеру фрагменты антител лишены этих недостатков и потому привлекают к себе все большее внимание. Фрагменты антител (одноцепочечные вариабельные фрагменты (scFv), минии диатела, нанотела), полученные методами генной инженерии и обладающие значительно более низкой молекулярной массой (12-100 кДа), демонстрируют улучшенную фармакокинетику по сравнению с полноразмерными антителами [15].

Меньший размер фрагментов способствует их лучшему проникновению в ткани, а также более быстрому выведению из крови через почки, что делает их предпочтительнее для создания РФЛП, нацеленных на ПСМА. Были получены фрагменты различных антител к ПСМА (преимущественно J591), меченные радионуклидами ^{99m}Tc, ⁶⁸Ga, ⁸⁹Zr, ¹¹¹In, ¹²³I, ¹³¹I [2]. Многие из них продемонстрировали высокоспецифичное связывание с ПСМА в экспериментах *in vitro* и *in vivo*, а также возможность визуализации ПСМА-позитивных опухолей.

Единственным РФЛП, дошедшим до стадии клинических исследований, стал препарат на основе мини-антител, меченных ⁸⁹Zr (⁸⁹Zr-IAB2M). Была отмечена хорошая переносимость и безопасность их использования для визуализации распространенного РПЖ и других раков мочевыделительной системы [16]. Как и ожидалось, миниантитело ⁸⁹Zr-IAB2M быстрее выводилось из крови, чем полноразмерное антитело ⁸⁹Zr-huJ591, что позволяет обнаруживать опухолевые поражения в течение 24–48 ч после введения по сравнению с 6–8 д для ⁸⁹Zr-huJ591. Поглощенная доза в печени составила 1.67 мГр/МБк для ⁸⁹Zr-IAB2M против 2.08 мГр/МБк для ⁸⁹Zr-huJ591 [16].

Низкомолекулярные ингибиторы ПСМА

Еще одним классом РФЛП, успешно применяемые в клинической практике для диагностики и терапии РПЖ, являются низкомолекулярные ингибиторы ПСМА. Они обладают преимуществом перед мАТ благодаря улучшенной проницаемости в солидные опухоли и более высокой степени специфического связывания с ПСМА, а также быстрее выводятся из крови и здоровых органов.

На сегодняшний день известно три класса ингибиторов ПСМА: (1) лиганды на основе фосфора, (2) тиолы и (3) лиганды на основе мочевины [2]. Наиболее изученными являются лиганды производные мочевины, состоящие из трех компонентов: ПСМА-связывающего мотива, содержащего глутамат-мочевина-лизин (Glu-Urea-Lys), линкера и хелатора, несущего радиоактивную метку.

Впервые низкомолекулярные ингибиторы ПСМА на основе мотива Glu-urea-Lys (¹²³I-MIP-1072 ((*S*)-2-(3-((*S*)-1-карбокси-5-(4-иодобензиламино)пентил)уреидо)пентандиовая кислота) и¹²³I-MIP-1095 ((*S*)-2-(3-((*S*)-1-карбокси-5-(3-(4-иодофенил)уреидо)пентил)уреидо)пентандиоваякислота)), были применены в клинике в 2008 г. для визуализации РПЖ [17]. Оба препарата были способны визуализировать как первичную опухоль, так и метастазы в мягких тканях и костях. Этот успех способствовал разработке новых РФЛП на основе низкомолекулярных ингибиторов ПСМА для ОФЭКТ и ПЭТ-диагностики РПЖ. Оптимальным радионуклидом для ОФЭКТвизуализации РПЖ считается ^{99m}Tc ($T_{1/2} = 6.01$ ч, $E_{\gamma} = 140.5$ кэВ), получаемый с помощью генератора ⁹⁹W/^{99m}Tc. Существует множество ингибиторов ПСМА, меченных ^{99m}Tc (^{99m}Tc-MIP-1404, ^{99m}Tc-НYNIC-iPSMA, ^{99m}Tc-PSMA-T4 и др.), которые были оценены для визуализации РПЖ [18].

Первым РФЛП с ^{99m}Tc, прошедшим три фазы клинических исследований, стал ^{99m}Tc-MIP-1404 (^{99m}Tc-Trofolastat). Результаты показали, что ^{99m}Tc-MIP-1404 был способен визуализировать клинически значимый РПЖ со специфичностью в диапазоне 71–75% [19]. На сегодняшний день ^{99m}Tc-MIP-1404 доказал свою эффективность для визуализации и стадирования первичного РПЖ, биохимического рецидива, а также для оценки ответа на лечение.

Еще один препарат, ⁹⁹mTc-PSMA I&S (Imaging and Surgery), продемонстрировал высокую эффективность интраоперационного обнаружения единичных и атипично локализованных метастазов в лимфатических узлах при проведении ПСМА-радионавигационной хирургии [20]. Этот РФЛП обладает замедленным клиренсом по сравнению с другими низкомолекулярными ингибиторами ПСМА за счет высокого связывания с белками плазмы крови (94%), но значительным уровнем накопления в опухоли и увеличением соотношения опухоль/фон в течение 21 ч после инъекции [21].

Для ПЭТ-визуализации РПЖ и метастазов были разработаны препараты с позитрон-излучающими радионуклидами ⁶⁸Ga ($T_{1/2} = 68$ мин, $E_{\beta+} =$ = 1.92 МэВ) и ¹⁸F ($T_{1/2} = 110$ мин, $E_{\beta+} = 0.65$ МэВ).

Среди имеющихся РФЛП с ⁶⁸Ga наибольший интерес представляет ⁶⁸Ga-PSMA-11 (также известный как ⁶⁸Ga-PSMA-HBED-CC), состоящий из фармакофора Glu-Urea-Lys и хелатора HBED-CC (N,N'-бис[2-гидрокси-5-(карбоксиэтил)бензил]этилендиамин-N,N'-диуксусная кислота). Препарат характеризовался высокоспецифичным поглощением ПСМА-экспрессирующими органами, быстрым клиренсом крови и низким накоплением в здоровых органах и тканях [21]. Кроме того, PSMA-11 легко пометить ⁶⁸Ga при комнатной температуре за несколько минут с высоким выходом и радиохимической чистотой [22].

Исследования показали, что ПЭТ/КТ с ⁶⁸Ga-PSMA-11 обладает высокой чувствительностью и специфичностью по сравнению с альтернативными методами визуализации, используемыми для выявления РПЖ, и позволяет отслеживать и выявлять рецидивы и метастазы РПЖ с высокой контрастностью [23, 24]. Вероятность обнаружения опухолевых поражений увеличивается с повышением уровня ПСА, с зарегистрированной частотой обнаружения около 50% при уровне ПСА < < 0.5 нг/мл и 80% — при уровне ПСА > 1.0 нг/мл [24]. Поэтому в 2020 году 68 Ga-PSMA-11 был одобрен FDA для диагностики РПЖ [25].

За последние несколько лет возрос интерес к разработке меченых ¹⁸F низкомолекулярных ингибиторов ПСМА. Это объясняется следующими причинами: 1) улучшенное качество изображений за счет более низкой позитронной энергии ¹⁸F по сравнению с ⁶⁸Ga; 2) циклотронный способ производства ¹⁸F дает возможность наработки большей активности; 3) более длительный период полураспада ¹⁸F по сравнению с ⁶⁸Ga позволяет доставлять РФЛП с ¹⁸F в ПЭТ-центры без циклотрона [26].

Одним из наиболее широко исследованных ¹⁸F-содержащих РФЛП является ¹⁸F-DCFPyL (2-(3-{1-карбокси-5-[(6-[¹⁸F]фторпиридин-3-карбонил)-амино]-пентил}-уреидо)-пентандиовая кислота). В ходе многочисленных проспективных клинических исследований был отмечен высокий профиль безопасности и высокая точность в определении очагов РПЖ по сравнению со стандартными методами визуализации, что привело к изменению схемы лечения более чем у 63% пациентов [27, 28]. В результате в 2021 г. ¹⁸F-DCFPyL (Pylarify[®]) был одобрен FDA для пациентов с подозрением на метастазы, которые потенциально излечимы с помощью хирургического вмешательства или другой терапии, а также для пациентов с подозрением на рецидив заболевания на основании повышенного уровня ПСА в крови [26].

РФЛП ¹⁸F-PSMA-1007. в отличие от ¹⁸F-DCF-РуL, выводится преимущественно через гепатобилиарную систему, благодаря чему с успехом может использоваться для выявления рецидива РПЖ или метастатических поражений в малом тазу. По сравнению с другими рентгенологическими и сцинтиграфическими методами визуализации ПЭТ/КТ с ¹⁸F-PSMA-1007 обладала более высокой чувствительностью, тогда как по сравнению с другими радиоиндикаторами ПЭТ/КТ, нацеленными на ПСМА, ¹⁸F-PSMA-1007 демонстрировал аналогичную диагностическую точность для начальной стадии РПЖ. Была отмечена высокая чувствительность ПЭТ/КТ или ПЭТ/МРТ с ¹⁸F-PSMA-1007 у пациентов с биохимическим рецидивом РПЖ, причем этот показатель сильно зависел от значений ПСА, составляя 66.7, 85.7 и 100% при уровнях ПСА 0.1-0.5 нг/мл, 0.5-1.0 нг/мл и более 1.0 нг/мл соответственно [29]. Кроме того, при проведении ПЭТ/КТ с ¹⁸F-PSMA-1007 было выявлено примерно в 5 раз больше очагов доброкачественного происхождения, чем с ⁶⁸Ga-PSMA-11 [30].

Низкомолекулярные ингибиторы ПСМА также широко используются для радиолигандной терапии РПЖ. Первым РФЛП, примененным для этой цели в клинике, стал ¹³¹I-MIP-1095. После проведения 1 цикла терапии с ¹³¹I-MIP-1095 (средняя активность 4.8 ГБк; диапазон 2–7.2 ГБк) уровень ПСА снизился не менее чем на 50% у 60.7% пациентов [31]. Поглощенные дозы в опухолевых очагах достигали 100–300 Гр. Кроме того, было отмечено длительное (до 10 д) удержание препарата в опухоли. У 25% пациентов наблюдалась транзиторная ксеростомия. ¹³¹I-MIP-1095 также продемонстрировал более легкую гематологическую токсичность по сравнению с радиоактивно мечеными антителами [31].

Значительный прогресс в области радиолигандной терапии РПЖ произошел после разработки в Германии низкомолекулярных ингибиторов ПСМА, меченных ¹⁷⁷Lu (¹⁷⁷Lu-PSMA-617 и ¹⁷⁷Lu-PSMA I&T). Оба препарата продемонстрировали высокое сродство к ПСМА и превосходные фармакокинетические свойства [2].

Проведение радиолигандной терапии заключается во введении 7.4 ГБк РФЛП с ¹⁷⁷Lu за цикл (всего 4-6 циклов с интервалом 6-8 недель). Наибольший опыт был получен с ¹⁷⁷Lu-PSMA-617 у пациентов с мКРРПЖ [2]. Тем не менее, опубликованные результаты клинических исследований весьма неоднородны из-за существенных различий включаемых в исследования пациентов и различных схем лечения как с точки зрения величины вводимых доз (от 1.1 до 14.8 ГБк для ¹⁷⁷Lu-PS-МА-617 и от 2 до 9.7 ГБк для ¹⁷⁷Lu-PSMA I&T), так и их количества, что затрудняет оценку эффективности проводимой терапии. Было показано, что примерно у 60% пациентов отмечалось снижение уровня ПСА более чем на 50%. Были выявлены заметные различия в мелиане выживаемости без прогрессирования (от 6.3 до 12 мес) и медиане общей выживаемости (от 12.7 до 60 нед). Нефро- или гепатотоксичности не наблюдалось. Гематологическая токсичность включала транзиторное снижение гемоглобина, нейтрофилов и тромбоцитов [2].

Несмотря на обнадеживающие результаты лечения пациентов с мКРРПЖ низкомолекулярными ингибиторами ПСМА, меченными ¹⁷⁷Lu, было обнаружено, что часть пациентов (от 20 до 36%) не отвечали на проводимую терапию [2]. Поэтому были разработаны РФЛП с α-излучающими радионуклидами. Первым из них стал низкомолекулярный лиганд PSMA-617, меченный ²²⁵Ac. На сегодняшний день противоопухолевая активность ²²⁵Ас-PSMA-617 была продемонстрирована в 6 клинических исследованиях, включающих 210 пациентов с мКРРПЖ [32]. Было показано, что терапия ²²⁵Ас-ПСМА-617 является эффективным и безопасным вариантом лечения пациентов с мКРРПЖ, а также представляет ценную альтернативу лечения для пациентов, у которых предварительная терапия с ¹⁷⁷Lu-PSMA-617 оказалась неэффективной. Эти результаты также показали, что среди всех пролеченных пациентов у 87% из них наблюдалось снижение уровня ПСА, тогда как у 66.1% пациентов снижение уровня ПСА составило более 50%. Общая выживаемость и выживаемость без прогрессирования составили 12.5 месяцев и 9.1 месяцев соответственно. Наиболее распространенным побочным эффектом терапии с ²²⁵Ac-PSMA-617 являлась ксеростомия, встречающаяся у 77.1% пациентов, однако у большинства ксеростомия была преходящей. Гемато- и нефротоксичность была низкой [32].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Использование РФЛП, специфичных к ПСМА, приобретает все большее клиническое значение для диагностики и терапии рака предстательной железы. На сегодняшний день уже доказана высокая чувствительность и специфичность ПЭТ/КТ с мечеными радиолигандами для диагностики как первичной опухоли и ее метастазов, так и ее биохимического рецидива.

Помимо диагностики, растет интерес к разработке радиолигандов, тропных к ПСМА, для радиолигандной терапии РПЖ. РФЛП, меченные α - или β -излучающими радионуклидами, позволяют локально доставлять высокие дозы радиоактивности непосредственно к опухолевым клеткам. Этот метод уже продемонстрировал высокую эффективность и низкую токсичность, а также более высокую общую выживаемость по сравнению со стандартной терапией у пациентов с мКРРПЖ.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. Global Cancer Observatory. https://gco.iarc.fr/.
- Czerwińska M., Bilewicz A., Kruszewski M., et al. // Molecules. 2020. V. 25 (7). P. 1743.
- 3. de Galiza Barbosa F., Queiroz M.A., Nunes R.F., et al. // Cancer Imaging. 2020. V. 20. P. 23.
- Rodriguez-Fraile M., Alonso P.T., Rosales J.J., et al. // Rev. Esp. Med. Nucl. Imagen. Mol. (Engl. Ed.). 2022. V. 41 (2). P. 126.
- Manyak M.J. // Expert. Rev. Anticancer Ther. 2008. V. 8 (2). P. 175.
- Pandit-Taskar N., O'Donoghue J.A., Morris M.J., et al. // J. Nucl. Med. 2008. V. 49 (7). P. 1066.
- Pandit-Taskar N., O'Donoghue J.A., Beylergil V., et al. // Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging. 2014. V. 41 (11). P. 2093.
- Pandit-Taskar N., O'Donoghue J.A., Durack J.C., et al. // Clin. Cancer Res. 2015. V. 21 (23). P. 5277.
- 9. Milowsky M.I., Nanus D.M., Kostakoglu L., et al. // J. Clin. Oncol. 2004. V. 22. P. 2522.
- Vallabhajosula S., Nikolopoulou A., Jhanwar Y.S., et al. // Curr. Radiopharm. 2016. V. 9 (1). P. 44.

- 11. Tagawa S.T., Vallabhajosula S., Christos P.J., et al. // Cancer. 2019. V. 125 (5). P. 2561.
- Niaz M.J., Batra J.S., Walsh R.D., et al. // Oncologist. 2020. V. 25 (6). P. 477.
- 13. Nelson B.J.B., Andersson J.D., Wuest F. // Pharmaceutics. 2021. V. 13 (1). P. 49.
- 14. *Tagawa S.T., Osborne J., Niaz M.J., et al.* // J. Clin. Oncol. 2020. V. 38. P. 114.
- 15. Rondon A., Rouanet J., Degoul F. // Cancers (Basel). 2021. V. 13 (21). P. 5570.
- Pandit-Taskar N., O'Donoghue J.A., Ruan S., et al. // J. Nucl. Med. 2016. V. 57 (12). P. 1858.
- 17. *Maresca K.P., Hillier S.M., Femia F.J., et al.* // J. Med. Chem. 2009. V. 52 (2). P. 347.
- 18. Duatti A. // Nucl. Med. Biol. 2021. V. 92. P. 202.
- Wester H.J., Schottelius M. // Semin. Nucl. Med. 2019.
 V. 49. P. 302.
- Robu S., Schottelius M., Eiber M., et al. // J. Nucl. Med. 2017. V. 58 (2). P. 235.
- 21. Eder M., Schäfer M., Bauder-Wüst U., et al. // Bioconjug. Chem. 2012. V. 23 (4). P. 688.

- 22. Kiess A.P., Banerjee S.R., Mease R.C., et al. // Q. J. Nucl. Med. Mol. Imaging. 2015. V. 59 (3). P. 241.
- 23. Fendler W.P., Calais J., Eiber M., et al. // JAMA Oncol. 2019. V. 5 (6). P. 856.
- 24. Afshar-Oromieh A., Holland-Letz T., Giesel F.L., et al. // Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging. 2017. V. 44. P. 1258.
- 25. *Liu A., Han J., Nakano A., et al.* // Chirality. 2022. V. 34 (1). P. 86.
- Piron S., Verhoeven J., Vanhove C., et al. // Nucl. Med. Biol. 2022. V. 106–107. P. 29.
- 27. *Morris M.J., Rowe S.P., Gorin M.A., et al.* // Clin. Cancer Res. 2021. V. 27 (13). P. 3674.
- Pienta K.J., Gorin M.A., Rowe S.P., et al. // J. Urol. 2021. V. 206. P. 52.
- 29. *Watabe T., Uemura M., Soeda F., et al.* // Ann. Nucl. Med. 2021. V. 35. P. 523.
- 30. *Rauscher I., Krönke M., König M., et al.* // J. Nucl. Med. 2020. V. 61 (1). P. 51.
- Zechmann C.M., Afshar-Oromieh A., Armor T., et al. // Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging. 2014. V. 41. P. 1280.
- 32. *Ma J., Li L., Liao T., et al.* // Front. Oncol. 2022. V. 12. P. 796657.

PSMA-Specific Radiophamaceuticals for Imaging and Therapy of Prostate Cancer

V. K. Tishchenko^{1,} *, V. M. Petriev^{1, 2}, O. P. Vlasova³, V. V. Krylov¹, P. V. Shegai³, S. A. Ivanov^{1, 4}, and A. D. Kaprin^{3, 4}

¹Tsyb Medical Radiological Research Centre, Branch of the National Medical Research Radiological Centre of the Ministry of Health of the Russian Federation, Obninsk, Kaluga oblast, 249031 Russia

²National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia

³National Medical Research Radiological Centre of the Ministry of Health of the Russian Federation, Obninsk, Kaluga oblast, 249036 Russia

⁴Peoples' Friendship University of Russia (RUDN University), Moscow, 117198 Russia

**e-mail: vikshir82@mail.ru* Received May 31, 2022; revised May 31, 2022; accepted June 6, 2022

Abstract—Molecular changes associated with prostate cancer result in increased expression of prostate specific membrane antigen (PSMA), which is a favorable target for imaging and therapy with radiopharmaceuticals. In this review the data on the most effective and clinically relevant PSMA-specific radiopharmaceuticals for diagnosis and therapy of prostate cancer were summarized. The advantages and drawbacks of ligands based on monoclonal antibodies and their fragments, as well as low molecular weight PSMA inhibitors were discussed.

Keywords: prostate specific membrane antigen (PSMA), prostate cancer, monoclonal antibodies, low molecular weight PSMA inhibitors

——— МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА ———

УДК 544.72.02

ОПТИМИЗАЦИЯ ПРОЦЕССОВ ФОРМИРОВАНИЯ ПОРИСТЫХ СТРУКТУР КРЕМНИЯ С ПОНИЖЕННОЙ ЦИТОТОКСИЧНОСТЬЮ

© 2022 г. А. Р. Илясов^{а, b, c, *}, Е. А. Гостева^{а, b, d}, В. В. Старков^е

^аНациональный исследовательский технологический университет "МИСиС", Москва, 119049 Россия ^bНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия ^cИнститут биоорганической химии им. академиков М.М. Шемякина и Ю.А. Овчинникова РАН,

Москва, 117997 Россия

^d Российский университет дружбы народов (РУДН), Москва, 117198 Россия ^eИнститут проблем технологии микроэлектроники и особочистых материалов РАН, Черноголовка, Московская обл., 142432 Россия *E-mail: ilyasov.1997@inbox.ru Поступила в редакцию 03.06.2023 г.

После доработки 03.06.2023 г. Принята к публикации 13.06.2023 г.

В работе представлены результаты серии экспериментов по определению цитотоксичности пористых структур кремния, полученных разными способами. Исследовались кристаллические и аморфные, микро- и нанопористые кремниевые слои с отжигом и без. Цитотоксичность изучалась по флуоресцентным микрофотографиям и с помощью стандартного коллориметрического МТТ-тестирования.

Ключевые слова: цитотоксичность, пористые наночастицы, наноструктуры, стратегии синтеза, наноструктурированная поверхность

DOI: 10.56304/S2079562922030186

введение

Кремниевые пластины имеют биомедицинский потенциал применения. Проведенные ранее исследования показали, что образцы чистого кремния, а также пористые слои на кремниевых пластинах, не являются цитотоксичными при инкубации на их поверхности биологических объектов [1, 2]. Наблюдалась также заметная тенденция к увеличению жизнеспособных клеток, инкубированных с пористым кремнием (PSi). При этом необходимо отметить, что PSi, сформированные на поверхности кремниевых пластин как правило методами анодного травления, могут существенно различаться по морфологии и электрофизическим свойствам [3].

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Формирование пористых слоев на поверхности кремниевых пластин

Для сравнения цитотоксичности на поверхности кремниевых пластин были сформированы следующие разновидности пористых слоев:

 кристаллические нанопористые слои (NPSi) с размером пор около 20 нм (образцы с №№ 1 и 4); пористые слои с вариативно изменяемой структурой пор по глубине слоя (GPSi-var), диаметр пор в аморфном нанопористом слое порядка 20-50 Å (образцы с № 2);

 пористые слои со столбчатой структурой пор диаметром около 2 мкм (образцы с № 3).

Клеточные культуры

Клетки SKOVip-kat культивировали в среде DMEM (HyClone, Logan, UT, США) с добавлением 10% эмбриональной бычьей сыворотки (Hy-Clone, Logan, UT, США) и 2 мМ L-глутамина (ПанЭко, Москва, Россия). Клетки инкубировали во влажной атмосфере с 5% CO₂ при 37°С. Для испытаний на цитотоксичность использовали клетки SKOVip-kat, стабильно экспрессирующие красный флуоресцентный белок Katushka [4].

Микроскопия

Съемка клеток на кремниевой пластине проводилась на флуоресцентном микроскопе Leica. Флуоресцентный белок Katushka имеет длины волн возбуждения и испускания 588 и 635 нм. Съемка клеток проводилась в канале Су5 (возбуждение 620/60



Рис. 1. Повреждение нанопористого GPSi-var слоя на образце 26.

нм). Поверхность пластин лучше была видна при использовании флуоресцентного канала Су3 (545/30 нм).

Съемка на флуоресцентном микроскопе проводилась два раза. В первый раз на пятый день посадки клеток на пластины (предварительно пластины были простерилизованы в сухожаре при 150°С в течение 2 ч), второй — после повторной стерилизации пластин при тех же условиях и еще пяти дней инкубации с клетками.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Формирование образцов с NPSi слоями

Для формирования NPSi слоев использовались сильно легированные кремниевые пластины n-типа проводимости (марка КЭС 0.008) с ориентацией поверхности (100), удельное сопротивление используемых образцов $\rho_v \sim (0.005-0.009)$ Ом см. Анодное травление проводилось по традиционной схеме в растворе HF : C₂H₅OH = 1 : 1, при постоянной плотности тока травления *j* = 80 мA/см². Глубина травления (толщина пористого слоя) задавалась временем травления. После формирования пористого слоя, образцы подвергались сушке на воздухе при *T* = 60–80°С и раскалывались на две части (например, №№ 1а, 1б). Образцы с индексом "б" подвергались дополнительной ЛФО обработке (лазерный фотонный отжиг) на воздухе в течении 30 с.

В отличии от процессов изготовления образцов №№ 1а, 16, пористые слои образцов №№ 4а, 46 формировались на структурах, предварительно окисленных (толщина окисла 0.3 мкм) по схеме, описанной в [5]. Схема предполагает формирование NPSi слоя в локальных областях поверхности кремниевой пластины с предварительно удаленным с поверхности окислом кремния. Образец № 46 также, как и образец № 16 подвергнут ЛФО обработке. Глубина пористых слоев для образцов №№ 1а, 16 составляла 90 мкм, а образцов №№ 4а, 46 — 95 мкм.

Формирование GPSi-var слоя

Формирование GPSi-var слоев проводилось по схеме, описанной в [6]. Использовались кремниевые пластины р-типа проводимости (КДБ-8) с ориентацией поверхности (100), $\rho_v = (7.5-10)$ Ом см. Анодное травление проводилось при постоянной плотности тока травления *j* = 15 мА/см² в растворе HF : C₃H₈O(ISO) = 6 : 1 с добавлением 10⁻³ M CTAC (CH₃(CH₂)₁₅N(CH₃)₃Cl). Глубина травления составила 38 мкм. Также, как и в предыдущем случае образцы разделялись на № 2а и обработанный ЛФО № 26.

Формирование макропористого PSi слоя

Использовались кремниевые пластины р-типа проводимости (КДБ-8) с ориентацией поверхности (100), $\rho_v = (7.5-10)$ Ом см. Анодное травление проводилось при постоянной плотности тока травления j = 15 мА/см² в растворе HF : DMF = = 1 : 10 с добавлением СТАС (10⁻³ M). Глубина травления составила 47 µm. После травления образец разделялся на №№ За и 36. Образец №36 также подвергался ЛФО обработке.

Цитотоксичность

Использование клеток SKOVip-kat обусловлено именно тем, что они флуоресцируют без добавления красителей, а интенсивность флуоресценции прямо связана с их состоянием. Погибающие клетки перестают производить и поддерживать в нормальном состоянии белки Katushka, из-за чего интенсивность их флуоресценции падает. Активно растущие клетки, наоборот, светятся ярче. Таким образом, была возможность сделать снимки клеток на поверхности непрозрачных кремниевых пластин (рис. 1 и 2).

Рисунок 1 демонстрирует деградацию пористости слоя на пластине 26 после двух инкубаций



Рис. 2. Количество клеток, наблюдаемое на пластине 16 во время первой посадки клеток и во время второй.

с клетками. Подобные результаты наблюдались и на остальных пластинах. На рис. 2 показано, что на одной и той же пластине в первом эксперименте наблюдалось значительно меньше живых клеток, чем во второй раз. Скорее всего, во время первой инкубации оставшиеся токсичные вещества были недоотмыты с поверхностей пластин, что вызывало клеточную гибель. Подобные эффекты уже наблюдались ранее.

Дополнительно, для количественной оценки цитотоксичности пластин был выполнен стандартный колориметрический МТТ-тест. Результаты его представлены на рис. 3.

Анализ данных этого графика демонстрирует тенденцию к уменьшению цитотоксического эффекта отожженных пластин, что особенно заметно для образца 1. Данный результат ранее не демонстрировался.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

По результатам анализа полученных изображений, а также анализа выживаемости клеток по данным МТТ-теста были сделаны следующие выводы:

 Условия хранения, содержания и подготовки образцов сильно влияют на выживаемость клеток.

 Отжиг влияет на цитотоксичность образцов (образцы б по сравнению с а менее токсичны).



Рис. 3. Выживаемость клеток спустя пять дней инкубации с кремниевыми пластинами.

 Аморфные слои более токсичные, чем кристаллические (2 по сравнению с 1 и 4).

 Клетки влияют на качество поверхности, пористая поверхность может деградировать из-за инкубации с клетками.

БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки Российской Федерации, Государственное задание № 075-00706-22-00.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- Гостева Е.А., Старков В.В., Илясов А.Р., Седловец Д.М. // Тез. докл. КЭЛТ. Т 2021. 13–17 сентября 2021, Черноголовка. С. 66–67.
- Gosteva, Iliasov A., Sedlovets D., Starkov V. // Proc. 2021 IEEE Int. Conf. Manipulation, Manufacturing and Measurement on the Nanoscale 3M-NANO. 2021. P. 441–444. https://doi.org/10.1109/3M-NANO49087.2021.9599796.
- 3. *Старков В.В.* // Все материалы. Энциклоп. справ. 2009. № 4. С. 13–21.
- Shipunova V.O., Kovalenko V.L., Kotelnikova P.A., Sogomonyan A.S., Shilova O.N., Komedchikova E.N., Zvyagin A.V., Nikitin M.P., Deyev S.M. // Pharmaceutics. 2022. V. 14 (1). P. 43. https://doi.org/10.3390/pharmaceutics14010043
- Starkov V.V., Gosteva E.A., Zherebtsov D.D., Chichkov M.V., Alexandrov N.V. // Processes. 2022. V. 10 (1). P. 163. https://doi.org/10.3390/pr10010163
- Starkov V.V., Gosteva E.A., Sedlovets D.M., Kah M.O. // J. Electrochem. Soc. 2018. V. 165 (11). P. E534–E539.

Formation Processes Optimization of Porous Silicon Structures with Reduced Cytotoxicity

A. R. Iliasov^{1, 2, 3, *}, E. A. Gosteva^{1, 2, 4}, and V. V. Starkov⁵

¹National University of Science and Technology MISiS, Moscow, 119049 Russia
²National Research Nuclear University (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia
³Shemyakin-Ovchinnikov Institute of Bioorganic Chemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, 117997 Russia
⁴Peoples' Friendship University of Russia (RUDN University), Moscow, 117198 Russia
⁵Institute of Microelectronics Technology and High Purity Materials, Russian Academy of Sciences, Chernogolovka, Moscow oblast, 142432 Russia
*e-mail: ilyasov. 1997@inbox.ru
Received June 3, 2022; revised June 3, 2022; accepted June 13, 2022

Abstract—The paper presents results of several experiments to determine the cytotoxicity of porous silicon structures synthesized by different methods. Crystalline and amorphous, micro- and nanoporous silicon layers with and without annealing were studied. Cytotoxicity was studied by fluorescence micrographs and by standard colorimetric MTT testing.

Keywords: cytotoxicity, porous nanoparticles, nanostructures, synthesis strategies, nanostructured surface

——— МЕДИЦИНСКАЯ ФИЗИКА И БИОФИЗИКА ———

УДК 544.72.02,544.076

ФОРМИРОВАНИЕ ТИТАНОВЫХ НАНОТРУБОК НА ПОВЕРХНОСТИ ДЕНТАЛЬНЫХ ИМПЛАНТАТОВ

© 2022 г. Е. А. Гостева^{а, b, c, *}, А. Б. Дымников^с, М. В Чичков^а, Э. Харка^с, М. Х. Ахмад^с

^аНациональный исследовательский технологический университет "МИСиС", Москва, 119049 Россия ^bНациональный исследовательский ядерный университет "МИФИ", Москва, 115409 Россия ^cРоссийский университет дружбы народов (РУДН), Москва, 117198 Россия

> **E-mail: gos-3@mail.ru* Поступила в редакцию 27.06.2022 г. После доработки 27.06.2022 г. Принята к публикации 04.07.2022 г.

В работе представлены результаты серии экспериментов по формированию нанотрубок диоксида титана на поверхности дентальных имплантатов. Исследовались однородность получения покрытий на фигурной поверхности заготовок дентальных имплантатов и морфология получаемой поверхности.

Ключевые слова: дентальные имплантаты, нанотрубки, наноструктурированная поверхность, биосовместимость, остеоинтеграция

DOI: 10.56304/S2079562922030174

ВВЕДЕНИЕ

На данный момент в ортопедии применяют изделия, созданные из различных сплавов, чаще всего на основе титана. Металлические протезы по-прежнему лидируют в медицинской практике, несмотря на рост использования полимерных материалов в имплантологии. Отсутствие абсолютно биоинертных материалов является общеизвестным фактом. Любой материал, так или иначе, вступает в реакции с окружающей средой. Следовательно, важно понимать, что использование необработанных металлов и сплавов может привести к отторжению имплантатов организмом [1]. В связи с этим важно, чтобы материалы, которые применяют в медицине были биоактивны и биосовместимы. Данная проблема решается при помощи создания необходимого интерфейса между биологической тканью и поверхностью имплантата [2].

Особое внимание уделяется диоксиду титана (TiO_2) , что объясняется превосходным сочетание его химических и физических свойств. Наноматериалы на основе TiO_2 — нанопорошки и тонкие пленки имеют большой потенциал и широко применяются в различных сферах [3].

МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Заготовки дентальных имплантатов

Для проведения электрохимического формирования покрытий были использованы заготовки дентальных имплантатов, изготовленные из сплава титана марки BT 1-00, являющегося прямым аналогом иностранного "чистого" титана марки Grade 1. Главными особенностями используемого сплава являются высокая прочность, пластичность, растяжимость и превосходные антикоррозийные свойства, независящие от температуры. К негативным сторонам сплава можно отнести пониженное содержание кислорода и железа, приводящее к снижению прочности, однако увеличение количества железа в сплаве может привести к образованию прослойки между имплантатом и костью, что будет свидетельствовать о недостаточной биоинертности [4, 5].

Сканирующая электронная микроскопия

Морфология, размерные характеристики, а также химический состав синтезированных покрытий были измерены с помощью сканирующего электронного микроскопа (СЭМ) MAIA 3 (Tescan, Чехия).

Сьемка проводилась в режиме вторичных электронов при ускоряющем напряжении от 7 до 20 кВ, величина рабочего отрезка составляла 5 мм.



Рис. 1. Внешний вид установки для электрохимического анодирования заготовок дентальных имплантатов.



Рис. 2. Источник питания постоянного напряжения.

РЕЗУЛЬТАТЫ

Предварительная подготовка образцов

Предварительно исследуемые образцы подвергались очистке от органических загрязнений. В качестве раствора для очистки использовался 5 М раствор соляной кислоты, обработка проводилась в ультразвуковой ванне в течение 10 мин при комнатной температуре. Затем образцы обильно промывались в деионизованной воде и высушивались с помощью сжатого воздуха.

Формирование образцов с нанотрубками на основе диоксида титана на поверхности дентальных имплантатов

Для получение развитой поверхности титана было проведено анодное электрохимическое травление с помощью уникальной установки разработанной для травления дентальных имплантатов в различных растворах электролитов.

На рис. 1 представлена установка, изготовленная при помощи аддитивных технологий по предварительно выполненным чертежам, учитывающим индивидуальные геометрические характеристики используемых заготовок дентальных имплантатов для анодного электрохимического травления. Для электрохимического травления использовались источники питания постоянного напряжения и постоянного тока. Для подачи постоянного напряжения использовался источник питания Mastech HY3005-2, представленный на рис. 2.

На заготовку дентального имплантата подается положительный потенциал от источника по-

2022



Рис. 3. СЭМ изображение полученных структур при увеличении $96700 \times (a)$, $150000 \times (b)$.

стоянного тока. Отрицательный электрод представляет собой Ni сетку круглой формы, плотно прижатой к стенкам напечатанной формы. Подобная форма электрода обеспечивает однородность электрического поля, а также позволяет удалять с поверхности пузырьки H₂, образующиеся в процессе травления.

Электрохимическое травление титана в растворе на основе этиленгликоля проводилось в нескольких режимах:

Анодное травление в растворе 0.5 мас. % NH₄F + + 4 мас. % H₂O + 95.5 мас. % C₂H₆O₂ при постоянном напряжении 30 В в течение 20 мин.



Рис. 4. Частичное оплавление полученной структуры под действием ускоренных электронов при напряжении на катоде 20 кВ.

Анодное травление в растворе 0.5 мас. % NH₄F + + 4 мас. % H₂O + 95.5 мас. % C₂H₆O₂ при постоянном токе 50 мA/60 B в течение 60 мин.

Анодное травление в растворе 0.3 мас. % NH₄F + + 2 мас. % H₂O + 97.7 мас. % C₂H₆O₂ при постоянном напряжении 60 В в течение 120 мин.

Сканирующая электронная микроскопия

Анализ образцов титана после электрохимического травления в растворах на основе этиленгликоля на СЭМ показал, что на поверхности титана образовалась развитая пористая структура. Более упорядоченная структура образовалась при травлении при 30 V в электролите содержащим 0.3 мас. % $NH_4F + 2$ мас. % $H_2O + 97.7$ мас. % $C_2H_6O_2$. Образовавшиеся поры имеют средний диаметр 50 нм, представленная на рис. 3.

При этом при использовании ускоряющего напряжения 20 кВ происходит деградация и отслаивание полученной структуры. Что видно на изображении 4.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Анализ образцов титана после электрохимического травления в растворах на основе этиленгликоля на СЭМ показал, что на поверхности титана образовалась развитая пористая структура. Более упорядоченная структура образовалась при травлении при 30 V в электролите содержащим 2 мас. воды. Образовавшиеся поры имеют средний диаметр 50 нм.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ/REFERENCES

- 1. Гюнтер В.Э., Ходоренко В.Н., Чекалкин Т.Л., Олесова В.Н. // Стоматология. 2013. Т. 92 (3). С. 11–14.
- Gosteva E.A., Dymnikov A.B., Starkov V.V., Sedlovets D.M., Valikhov M.P., Vishnevsky D.A., Chekhonin V.P., Tumanyan G.A., Ahmad M.K. // Biomimetics. 2021. V. 6. P. 61.
 https://doi.org/10.2200/hiomimetics6040061

https://doi.org/10.3390/biomimetics6040061

- 3. Chen X. // Chem. Rev. 2007. V. 107 (7). P. 2891–2959.
- Волков А.В., Смбатян Б.С., Назарян Д.Н., Мураев А.А. // Современные технологии в медицине. 2018. Т. 10 (3). С. 7–13. https://doi.org/10.17691/stm2018.10.3.1
- Иванов С.Ю., Калинченко С.Ю., Гусейнов Н.А., Мураев А.А., Сафи А.Т., Поляков К.А., Смыкалова А.С. // Вестник Росс. акад. мед. наук. 2020. Т. 75 (5). С. 552–560.

Formation of Titanium Nanotubes on the Surface of Dental Implants

E. A. Gosteva^{1, 2, 3, *}, A. B. Dymnikov³, M. V. Chichkov¹, E. Harka³, and M. Kh. Ahmad³

¹National University of Science and Technology MISiS, Moscow, 119049 Russia ²National Research Nuclear University MEPhI (Moscow Engineering Physics Institute), Moscow, 115409 Russia ³Peoples' Friendship University (RUDN University), Moscow, 117198 Russia ^{*}e-mail: gos-3@mail.ru Received June 27, 2022; revised June 27, 2022; accepted July 4, 2022

Abstract—This study represents the results of a series of experiments about the formation of titanium dioxide nanotubes on the implants surfaces. Were investigated the obtained uniformity of surface coatings blank in dental implants and the surfaces morphology.

Keywords: dental implants, nanotubes, nanostructured surfaces, biocompatibility, osseointegration